

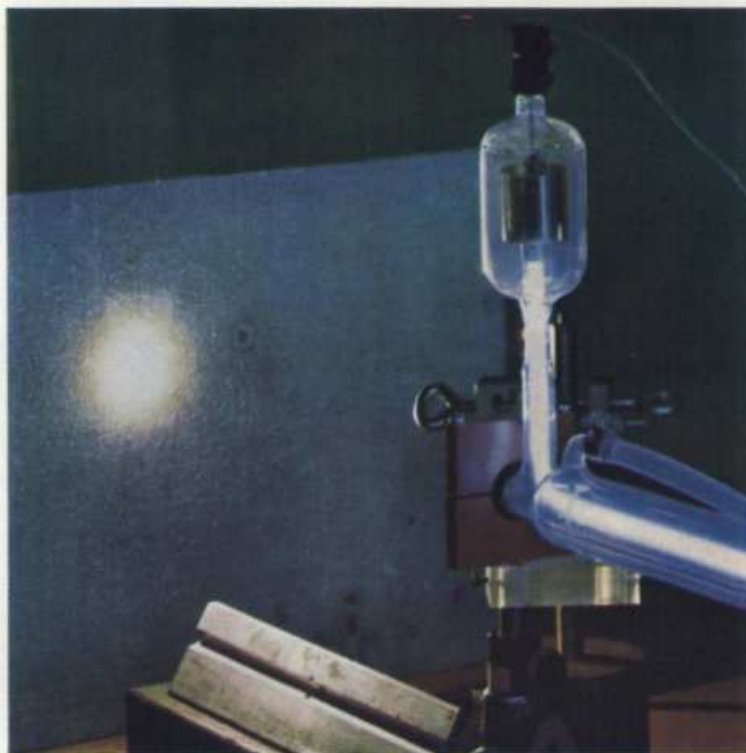
PHILIPS TECHNISCH TIJDSCHRIFT

JAARGANG 28, 1967, no. 7

Afgesmolten CO₂-lasers voor groot vermogen

W. J. Witteman

De laser, ook wel optische maser genoemd, heeft zich in zeer korte tijd ontwikkeld van een laboratoriumcuriositeit tot een op industriële schaal geproduceerd apparaat waarvoor grote belangstelling bestaat en waarvoor vele toepassingen in het verschiets liggen of alreeds gerealiseerd zijn. In onderstaand artikel wordt een ontwikkeling beschreven op het gebied van infraroodlasers (10 μm) van groot vermogen die de mogelijkheid heeft geopend om tot gemakkelijk hanteerbare instrumenten te komen.



Inleiding

Een gaslaser kan men beschouwen als een optische trilholtte of interferometer, gevuld met een gas dat als actief medium dienst kan doen. Met een actief medium wordt hier bedoeld een medium waarin voor twee aangeslagen toestanden van de atomen of moleculen geldt dat de bezettingsdichtheid van het hoogste energieniveau (het „bovenniveau”) groter is dan de bezettingsdichtheid van het laagste energieniveau (het „benedenniveau”), kortweg: dat (per cm^3) méér atomen of moleculen zich in de energetisch hoogste toestand bevinden, juist andersom als bij thermisch evenwicht. Deze zg. inversie in de bezetting van energieniveaus kan b.v. onder gunstige omstandigheden tot stand komen in een gasontlading. Een gaslaser kan dan een gasontladingsbuis zijn waarvan de beide einden voorzien zijn van vlakke of sferische spiegels; deze spiegels begrenzen de trilholtte.

Dr. W. J. Witteman, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

Indien nu de straling waarvan de energiequanta corresponderen met het energieverval van de beide niveaus, voldoende sterk door de spiegels gereflecteerd wordt en de frequentie ervan een der eigen frequenties van de trilholtte is, kan laserwerking tot stand komen. Daarbij geschieden de overgangen van het boven- naar het benedenniveau, waarbij de stralingsquanta vrijkomen, niet spontaan, maar onder invloed van reeds aanwezige straling van dezelfde golflengte (zg. gestimuleerde emissie). Daardoor is later gegenereerde straling in fase met de reeds aanwezige en verkrijgt men een coherente bundel, die in intensiteit blijft toenemen totdat de verliezen gelijk geworden zijn aan de produktie. Een gedeelte van deze bundel kan men „uitkoppelen”, d.w.z. uit de trilholtte laten ontsnappen. Het uitkoppelen gebeurt meestal door gebruik te maken van gedeeltelijk doorlatende spiegels.

Tot voor kort had alle gevonden laserwerking betrekking op overgangen tussen elektronenniveaus. Voor

deze lasers geldt in het algemeen dat het gemiddelde vermogen van de uitwendige laserbundel enige mW bedraagt en dat het rendement (de verhouding van genoemd vermogen tot het verbruikte elektrische vermogen in de ontlading) laag is. Bij gaslasers van dit type, b.v. de helium-neonlaser, is het rendement van de orde van grootte van 10^{-4} .

Het lage rendement voor laserwerking op elektronenovergangen is het gevolg van de volgende drie oorzaken. 1) Het energieverval van de desbetreffende energieniveaus is klein in vergelijking met de aanslagenergie van het bovenniveau. 2) Deze aanslagenergie is vele malen groter dan de gemiddelde energie van de vrije elektronen in een gasontlading. Dit betekent dat slechts een klein gedeelte van de botsingen tussen deze elektronen en atomen effectief is: alleen de elektronen waarvan de energie groter is dan de aanslagenergie (of eraan gelijk), kunnen het gewenste niveau aanslaan. Bij de meeste botsingen wordt elektronenenergie omgezet in thermische energie van het gas of er worden niet-relevante niveaus aangeslagen. 3) Door het Dopplereffect ten gevolge van de thermische beweging der atomen, vertoont de straling die afkomstig is van overgangen tussen twee bepaalde elektronenniveaus, een zekere spreiding in frequentie. Nu zal van alle aangeslagen atomen slechts een klein aantal een zodanige snelheid hebben dat de frequentie van de straling die ze bij terugval naar het grondniveau zouden uitzenden, gelijk is aan een van de resonantiefrequenties van de optische trilhulpe. Heeft het bovenniveau een lange levensduur, dan zal er voor de meeste aangeslagen atomen een ogenblik komen waarop, door botsingen, de thermische snelheid juist een geschikte waarde heeft aangenomen; de overgang vindt dan, doordat het hier *gestimuleerde* emissie betreft, ogenblikkelijk plaats, zodat uiteindelijk vrijwel alle aangeslagen moleculen bijdragen tot het laserproces. Bij elektronenovergangen is de levensduur van het bovenniveau echter meestal zo kort (ca. 10^{-7} s) dat de overgang gewoonlijk reeds heeft plaatsgevonden door spontane emissie voordat de thermische snelheid een geschikte waarde heeft kunnen aannemen.

Deze verschijnselen, die het rendement sterk drukken, zijn veel minder effectief bij aanslag van vibratie- en rotatieniveaus van moleculen. Voor laserwerking op vibratie- en rotatieovergangen, die meestal in het infrarood zijn gelegen, liggen de energieniveaus veel gunstiger. De aanslagenergie van een vibratieniveau dat als bovenniveau fungeert, is veel kleiner dan de gemiddelde elektronenenergie, zodat bijna alle elektronen in de ontlading kunnen bijdragen tot de excitatie van het bovenniveau. Verder geldt in het algemeen dat de levensduur van een bezet bovenniveau zo lang is dat bij laserwerking terugval naar het benedenniveau bijna uitslui-

tend via gestimuleerde emissie plaatsvindt, thermische vibratielaxatie en spontane emissie zijn hier te verwaarlozen. Met een laser waarin zich een geschikt moleculair medium bevindt, kan men dan ook met zeer gunstig rendement (tot boven 20%) een zeer intense laserbundel opwekken. Zo kan men met een dergelijke laser van ca. 2 m lengte reeds een bundel van 100 W continu verkrijgen; wenst men een groter vermogen, dan behoeft daarvoor de buis slechts verlengd te worden.

Lasers met een dergelijk groot vermogen bieden zeer aantrekkelijke technologische toepassingsmogelijkheden. De laserbundel met zijn zeer geringe divergentie kan met behulp van spiegels of lenzen worden geconcentreerd binnen een gebied dat slechts enkele malen de golflengte bedraagt. Afhankelijk van de reflexie en de warmtegeleiding van het materiaal ter plaatse, kunnen daar zeer hoge temperaturen bereikt worden. In het hypothetische geval dat reflexie en warmtegeleiding geheel ontbreken, zou een temperatuur boven $50\,000^\circ\text{K}$ bereikbaar zijn. In de praktijk blijkt dat hoog smeltende materialen, zoals b.v. wolfram, mica, kwartsglas en asbest, gemakkelijk met een gefocusseerde laserstraal kunnen worden gesneden. Ook in gevallen waarin geen uitzonderlijk hoge temperatuur vereist is, zal het voorkomen dat de laser als warmtebron de voorkeur verdient boven de conventionele warmtebronnen. Zo zal een laser goede diensten kunnen bewijzen wanneer de warmteontwikkeling strikt beperkt moet blijven tot het gebied waarin men geïnteresseerd is. Daarnaast produceert deze warmtebron geen verontreinigingen en oefent hij geen druk op het werkstuk uit, zoals b.v. een blaasvlam. Ook gaat men infraroodlasers gebruiken voor „diagnostiek” bij plasmaonderzoek en denkt men over toepassing ervan voor communicatiedoeleinden. Nog afgezien van de hoge intensiteiten en rendementen kunnen deze lasers van veel belang zijn voor allerlei onderzoek in het infrarood, vooral in het verre infrarood ($\lambda > 20\,\mu\text{m}$); in het verleden kreeg dit gebied, bij gebrek aan bronnen van voldoende hoge intensiteit, relatief te weinig belangstelling.

Mede op grond van deze laatste overweging is er de laatste twee jaar intensief onderzoek aan moleculaire lasers verricht. In 1964 werd ontdekt ^[1] dat tijdens een ontladingsstoot in waterdamp laserwerking verkregen wordt die moet worden toegeschreven aan rotatie- en vibratieovergangen. Uit latere onderzoekingen bleek dat bij geschikte dimensionering van de laser en bij gebruik van bepaalde andere moleculaire gassen, ook *continue* werking verkregen kon worden ^[2]. Is men in de eerste plaats uit op een groot vermogen, dan is kool-dioxide, naar men vond, het meest geschikte gas. Bij de eerste onderzoekingen met dit gas, dat infrarode

straling van ca. 10,6 μm levert, werd een continue bundel van 1 mW verkregen [3].

Nadien bleek dat het vermogen van CO₂-lasers aanzienlijk vergroot kon worden door stikstof en helium aan het gas toe te voegen en door de gasontladings- en constructieparameters — zoals de lengte en de diameter van de trilholt, de kromtestraal van de spiegels en de wijze van uitkoppeling — goed te kiezen. Een dergelijke laser kon echter alleen continu een groot vermogen leveren wanneer tijdens de werking het gasmengsel steeds verversd werd. Men moest dus werken met een *open systeem*. Dit is voor praktische toepassing uiteraard minder aantrekkelijk.

Kortgeleden is ons nu gebleken dat een groot uitgangsvermogen ook zeer goed verkregen kan worden met een *afgesmolten systeem* zonder dat dit betaald hoeft te worden met een korte levensduur. Essentieel daarvoor is dat men, behalve de reeds genoemde gasen, ook waterdamp aan het CO₂ toevoegt, en dat men speciale materialen gebruikt voor de elektrodes en de laserbuis. Kiest men de juiste dimensies, dan kan voor een afgesmolten systeem een rendement verkregen worden dat, al naar het afgenomen stralingsvermogen, varieert tussen 16 en 21 %, terwijl een continue stralingsproductie van ongeveer 1 W/cm³ gas bereikt kan worden. Levensduurproeven hebben aangetoond dat toevoegen van waterdamp de levensduur van een afgesmolten CO₂-laser — d.i. de tijd na welke de intensiteit is gedaald tot 90 % van de beginwaarde — kan verlengen tot meer dan 1000 uur.

In dit artikel willen we een beschrijving geven van door ons vervaardigde en onderzochte afgesmolten CO₂-lasers. Daaraan vooraf gaat een kwalitatieve uiteenzetting omtrent de processen die aan de werking van een CO₂-laser ten grondslag liggen en omtrent de rol die de drie aan het CO₂ toegevoegde gasen daarbij spelen [4].

Het inversiemechanisme

Laserwerking op vibratie-rotatieniveaus

De moleculaire vibraties van CO₂ zijn superposities van drie grondtrillingen (fig. 1): de symmetrische valentietrilling, de buigingstrilling en de asymmetrische valentietrilling. De trillingswijzen van de laagste aangeslagen toestanden van deze vibraties worden resp. aangeduid [5] met 10⁰0, 01¹0 en 00⁰1. Het energieniveauschema van enige vibratietoestanden is weergegeven in fig. 2. Onder bepaalde gasontladingscondities worden deze moleculaire vibraties aangeslagen. De aldus verkregen aangeslagen toestanden zijn niet blijvend, want door botsingen tussen de moleculen en door spontane emissie komt het molecuul weer terug in zijn grondtoestand. Naarmate de excitatie gemakkelijker plaats-

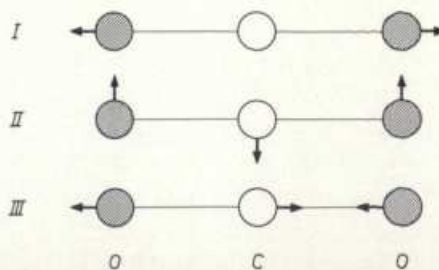


Fig. 1. Schematische voorstelling van de drie grondtrillingen van een kooldioxidemolecuul. I de symmetrische valentietrilling. II de buigingstrilling. III de asymmetrische valentietrilling.

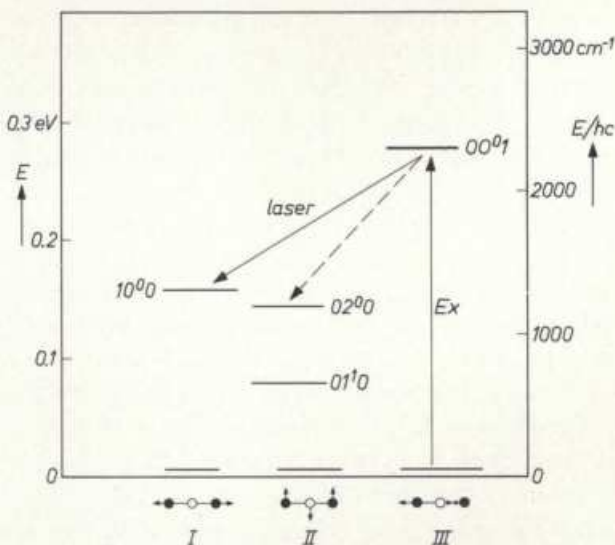


Fig. 2. Energieniveauschema van de drie trillingswijzen (vgl. fig. 1) van kooldioxide voor het geval dat de elektronen zich in de grondtoestand bevinden. Linker ordinaatschaal de energie E in eV, rechts E/hc (h constante van Planck, c lichtsnelheid) in cm^{-1} . Slechts twee of drie van de laagste vibratieniveaus zijn getekend. De verticale pijl Ex symboliseert de excitatie, de getrokken pijl tussen de niveaus van de toestanden 00⁰1 en 10⁰0 de overgang waarop de laserwerking plaatsvindt (golflengte ca. 10,6 μm). Ook op de overgang van de gestreepte pijl kan laserwerking optreden.

vindt en de levensduur van een bepaalde trillingstoestand langer is, zal een grotere fractie van de moleculen in laatstgenoemde toestand verkeren. Anders gezegd: voor dit energieniveau wordt dan bij stationaire uitwendige condities een hogere bezettingsdichtheid

[1] A. Crocker, H. A. Gebbie, M. F. Kimmitt en L. E. S. Mathias. *Nature* **201**, 250, 1964.

[2] W. J. Witteman en R. Bleekrode, *Phys. Letters* **13**, 126, 1964.

[3] C. K. N. Patel, *Phys. Rev.* **136**, A 1187, 1964.

[4] Voor een meer kwantitatieve beschouwing, zie W. J. Witteman, *Philips Res. Repts.* **21**, 73, 1966 (no. 2).

[5] De aanduiding van de trillingstoestand van een molecuul gaat volgens deze conventie dat de drie getallen de vibratie-quantumgetallen zijn van resp. de trillingen I, II en III. De toevoeging rechts boven bij het middelste getal is het quantumgetal van het impulsmoment van het C-atoom. De trilling behoeft nl. niet plaats te vinden in een plat vlak, maar het is ook mogelijk dat de atomen cirkel- of ellipsbanen beschrijven, waarbij de O-atomen hun baan doorlopen in een richting tegengesteld aan die van het C-atoom. Als het molecuul niet roteert, is het gezamenlijke impulsmoment van de O-atomen gelijk en tegengesteld aan dat van het C-atoom.

(kortweg: bezetting) gevonden. De gasontladingscondities kunnen nu zo gekozen worden dat de bezetting van het 00^01 -niveau groter is dan die van de andere in fig. 2 geschetste niveaus. Dit is vooral toe te schrijven aan de relatief lange levensduur van de vibratietoestand 00^01 . Er kan dus een actief medium verkregen worden.

De voor CO_2 gevonden laserwerking berust op overgangen tussen het 00^01 -niveau als bovenniveau en het 10^00 - of het 02^00 -niveau als benedenniveau. Deze overgangen zijn in fig. 2 met pijlen aangeduid. Onder normale omstandigheden domineert de overgang met de getrokken pijl. Dit komt doordat de desbetreffende overgangswaarschijnlijkheid het grootst is terwijl tevens, door een merkwaardig toeval, de inversies van de niveaubezettingen elkaar voor beide overgangen niet veel kunnen ontlopen. Dit laatste houdt verband met het feit dat de beide benedenniveaus bijna op dezelfde hoogte liggen. Mocht één ervan tijdens de werking van de laser sterker bezet worden dan het andere, dan zal deze ongelijkheid door botsingen zeer snel worden teniet gedaan (zg. koppeling van niveaubezetting). Ofschoon tijdens het laserproces op de overgang $00^01 \rightarrow 10^00$ de desbetreffende inversie kleiner wordt, zal dus, als gevolg van de sterke koppeling tussen de twee benedenniveaus, de inversie van de overgang $00^01 \rightarrow 02^00$ eveneens kleiner worden en ongeveer gelijk blijven aan de inversie van de andere overgang. Alleen bij lage gasdruk, een situatie waarin de koppeling van de benedenniveaus door het relatief gering aantal botsingen veel zwakker is, kan men naast de andere een merkbare laserwerking op de overgang $00^01 \rightarrow 02^00$ krijgen [3]. De werking van onze lasers, waarin de gasdruk relatief hoog is, berust dan ook nagenoeg uitsluitend op de overgang $00^01 \rightarrow 10^00$. Bij dit laserproces levert dus, zoals we gezien hebben, een vibratiequantum van de geëxciteerde asymmetrische valentietrilling van een molecuul een kleiner quantum aan de symmetrische valentietrilling van dit molecuul, terwijl het energieverschil in straling wordt omgezet.

Een andere mogelijkheid om laserwerking op niet-gewenste overgangen te onderdrukken, bestaat in het toepassen van selectieve reflexie. Men zorgt er daarbij voor dat alleen de gewenste straling door de spiegels die de trilholt vormen, gereflecteerd wordt [6]. Het is aldus zelfs mogelijk laserwerking op overgangen tussen hogere aangeslagen vibratieniveaus te verkrijgen.

Behalve de vibraties moeten we ook de rotaties van het gasmolecuul beschouwen. In CO_2 is de onderlinge afstand van de rotatieniveaus globaal $1000 \times$ zo klein als die van de vibratieniveaus. Bij iedere vibratietoestand vindt men tientallen bezette rotatieniveaus. Overgangen zoals in fig. 2 schematisch door een pijl zijn weergegeven, zijn in feite steeds overgangen tussen een rotatieniveau behorend bij de ene vibratietoestand

en een rotatieniveau behorend bij de andere (zg. vibratie-rotatieovergangen), met dien verstande dat het rotatiequantumgetal j van het benedenniveau steeds 1 groter is dan dat van het bovenniveau (P -tak van het spectrum [7]). De laserstraling zal dus in het algemeen niet monochromatisch zijn, maar uit een aantal spectrumlijnen bestaan waarvan de golflengten globaal 20 nm (200 Å) verschillen. Daar de rotatietoestanden zeer gemakkelijk in elkaar overgaan, kan de bezetting van de rotatieniveaus die bij een zekere vibratietoestand behoren, beschreven worden met de formule van Boltzmann (fig. 3). De overgangen met de grootste intensiteit zijn meestal toe te schrijven aan de overgangen $P(j=18)$, $P(20)$ en $P(22)$ van de 00^01 - 10^00 -band van het vibratie-rotatiespectrum van CO_2 .

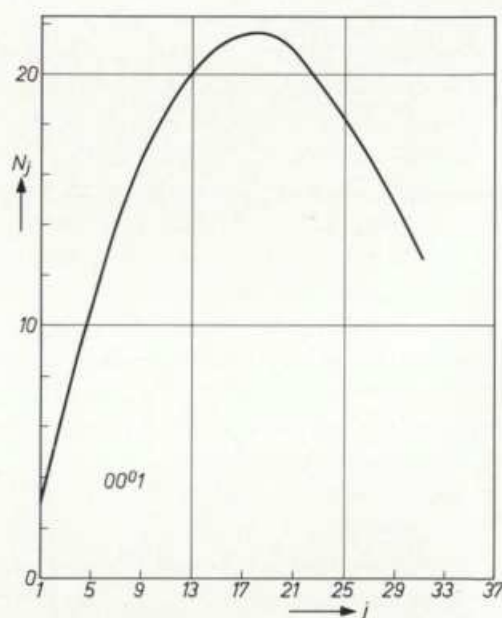


Fig. 3. De bezettingsdichtheid N_j van de rotatieniveaus behorend bij de vibratietoestand 00^01 (in willekeurige eenheden) als functie van het rotatiequantumgetal j .

Bij bepaalde laserconstructies kunnen slechts enkele rotatieniveaus voor laserwerking in aanmerking komen. Dank zij de grote snelheid van de overgangen tussen de rotatieniveaus onderling en de relatief lange levensduur van de vibratietoestand van het bovenniveau kan toch de in de andere rotatieniveaus beschikbare energie via rotatieovergangen voor gestimuleerde emissie beschikbaar komen. We hebben dan ook gevonden dat de totale bundelintensiteit onafhankelijk is van het aantal rotatieniveaus dat bij de laserwerking betrokken is.

Toevoeging van stikstof

Het is duidelijk dat de stralingsproductie groter is naarmate er per tijdseenheid meer moleculen met aan-

geslagen bovenniveau geproduceerd worden. Een grote produktie kan men nu bereiken door aan het koolzuurgas stikstof toe te voegen; bij een botsing tussen een vibrationeel geëxciteerd N₂-molecuul en een CO₂-molecuul staat eerstgenoemd molecuul zijn vibratie-energie zeer gemakkelijk af en wordt het CO₂-molecuul vibrationeel geëxciteerd [8]. In de praktijk kiest men daarom de gasontladingscondities zo dat in hoofdzaak de stikstofvibraties worden aangeslagen.

De hoge efficiëntie van de CO₂-excitatie via geëxciteerde stikstof is te danken aan het samengaan van de volgende drie gunstige omstandigheden. 1) Stikstofmoleculen die in de grondtoestand verkeren, worden gemakkelijk door elektronen van 2 à 3 eV in een vibratietoestand gebracht [9]. 2) Bij een botsing dragen ze hun energie gemakkelijk aan CO₂ over, doordat de vibratiequanta van stikstof bijna gelijk zijn aan die van de trillingswijze 00⁰1 van CO₂. 3) Ze raken daarentegen hun energie niet gemakkelijk op andere wijze kwijt: in de eerste plaats kan de vibratie-energie niet gemakkelijk in translatie-energie omgezet worden, en verder is er geen elektrisch dipoolmoment dat aanleiding zou kunnen geven tot spontane emissie van straling. Experimenteel is gevonden dat toevoegen van stikstof de intensiteit van de laserbundel van een CO₂-laser enige malen zo groot maakt.

Toevoeging van waterdamp

In een stationaire toestand is de stralingsproduktie eveneens groter naarmate de bezetting van het beneden-niveau lager is. Er moet dus voor gezorgd worden dat moleculen die door de emissie van een stralingsquantum in de trillingstoestand 10⁰0 zijn geraakt, zo snel mogelijk naar de grondtoestand terugkeren.

Zijn er geen andere gassen dan stikstof en koolzuur aanwezig, dan geschiedt deze terugkeer door botsingen (botsingsrelaxatie). Hierbij wordt de vibratie-energie van de symmetrische valentietrilling eerst overgedragen aan de buigingstrilling en vervolgens wordt, eveneens bij een botsing, de energie van de buigingstrilling afgestaan aan de translatiebeweging van de beide botsende moleculen [10]. Dit relaxatieproces verloopt in vergelijking met de andere processen die voor laserwerking essentieel zijn (excitatie van stikstof, energie-overdracht van stikstof aan koolzuur en gestimuleerde emissie), het langzaamst en is derhalve in de gegeven omstandigheden bepalend voor de stralingsproduktie. Voor het overgaan van een CO₂-molecuul uit de vibratietoestand 10⁰0 naar de grondtoestand zijn er dan, volgens berekeningen, gemiddeld ten minder dan ca. 5×10^4 botsingen nodig.

In de inleiding is aangestipt dat het uitgangsvermogen zowel verbeterd kon worden door te werken met een stromend gas als door toevoeging van waterdamp.

In beide gevallen wordt de ontvolking van het beneden-niveau versneld; bij het gebruik van stromend gas eenvoudig doordat relatief veel moleculen met bezet benedenniveau worden afgevoerd. (Verder is het stromen o.i. van nut voor het afvoeren van zeer nadelige verontreinigingen die tijdens de gasontlading vrijkomen uit de glaswand en de elektrodes, alsmede voor het vervangen van gas dat tijdens de ontlading dissocieert.)

Het mechanisme van de door ons gevonden versneling door middel van waterdamp [11], welke vondst de constructie van afgesmolten CO₂-lasers heeft mogelijk gemaakt, is in zekere zin het spiegelbeeld van de invloed van stikstof op de bezetting van het bovenniveau. Het laagste vibratieniveau van een watermolecuul ligt dicht bij het benedenniveau van de laserovergang in CO₂. Een watermolecuul kan daardoor tijdens een botsing gemakkelijk de vibratie-energie van een CO₂-molecuul dat in de vibratietoestand 10⁰0 verkeert, overnemen. Een op deze wijze vibrationeel geëxciteerd watermolecuul raakt zijn vibratie-energie bijzonder snel kwijt door botsingen met andere watermoleculen, en wel dank zij de sterke dipoolinteractie. Daarbij wordt de vibratie-energie omgezet in translatie-energie.

Experimenteel is gebleken dat bijmenging van 0,2 torr H₂O reeds een zo sterk effect heeft dat het uitgangsvermogen niet meer bepaald wordt door de snelheid waarmee de ontvolking van het beneden-niveau plaatsvindt. In het optimale geval kan door toevoeging van waterdamp het rendement meer dan $2 \times$ zo groot worden [4].

De CO₂-laser met vier componenten

Het mechanisme van de CO₂-laser zoals tot dusver beschreven, kan men beschouwen als een aaneenschakeling van de volgende vier moleculaire processen (fig. 4).

- Aanslag van vibraties van stikstofmoleculen door de elektronen in de gasontlading.
- Overdracht van vibratie-energie door stikstofmoleculen aan CO₂-moleculen.
- Gestimuleerde emissie van elektromagnetische straling bij de beschreven vibratie-rotatieovergangen.
- Overgang van het CO₂-molecuul naar de grondtoestand; hierbij wordt door botsingen met H₂O-

[6] G. Moeller en J. Dane Rigden, Appl. Phys. Letters **8**, 69, 1966 (no. 3).

[7] Overgangen waarbij $\Delta J = 0$ of $\Delta J = -1$ is (resp. Q- en R-tak van het spectrum), treden onder onze experimentele omstandigheden niet op.

[8] N. Legay-Sommaire, L. Henry en F. Legay, C. R. Acad. Sci. Paris **260**, 3339, 1965.

[9] J. C. Y. Chen, J. chem. Phys. **40**, 3513, 1964.

[10] W. J. Witteman, J. chem. Phys. **35**, 1, 1961, en **37**, 655, 1962.

[11] W. J. Witteman, Phys. Letters **18**, 125, 1965.

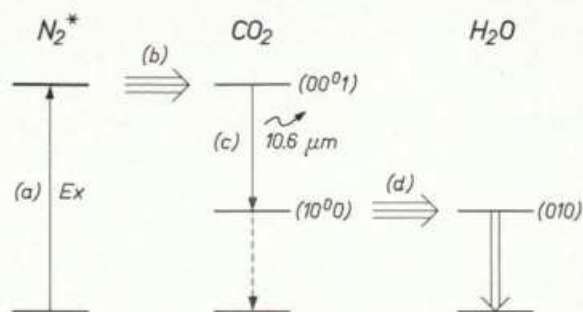


Fig. 4. Schematische voorstelling van het mechanisme van de werking van een CO_2 -laser gevuld met N_2 , CO_2 en H_2O . Twee- en drievoudige pijlen duiden processen aan die relatief snel resp. zeer snel verlopen.

moleculen de vibratie-energie van de symmetrische valentietrilling omgezet in translatie-energie.

In zo'n laser nu wordt de stralingsproductie bepaald door de produktie van moleculen met bezet boven-niveau (proces a). We hebben zojuist reeds gezien dat de aanwezigheid van waterdamp de ontvolking van het benedenniveau zeer snel doet verlopen. Proces (d) bepaalt de stralingsproductie dus niet. Hetzelfde geldt voor proces (b): men kan berekenen dat er voor het overdragen van de vibratie-energie van een stikstofmolecuul op een CO_2 -molecuul gemiddeld slechts enkele botsingen nodig zijn. (Dit is o.a. te danken aan het feit dat er niet eerst een omzetting in translatie-energie behoeft plaats te vinden.)

Nu had men bij het onderzoek aan een open laser met stromend gas reeds gevonden dat de maximale stralingsproductie vergroot wordt als men aan de genoemde gassen nog helium toevoegt [12]. Voor onze afgesmolten lasers is dit eveneens het geval gebleken. Gezien het bovenstaande, moet het toegevoegde helium een gunstig effect hebben op de snelheid waarmee het proces (a) verloopt. Op welke wijze dat geschiedt, is echter nog niet precies bekend. Het moet waarschijnlijk hierin gezocht worden dat men gunstiger gasontladingscondities verkrijgt. Blijkens door ons uitgevoerde sondemetingen neemt in ieder geval, behalve bij zeer geringe stroomsterkte, de elektronentemperatuur toe als men helium toevoegt. In onze afgesmolten lasers bleken na toevoeging van helium zowel de ontladingsstroom waarbij de stralingsproductie maximaal is, als ook de maximale stralingsproductie zelf ca. $3 \times$ zo groot geworden te zijn.

Zo goed als er gassen zijn die de laserwerking bevorderen, zo goed zijn er ook die het tegengestelde doen. Er moet daarom veel zorg besteed worden aan de zuiverheid van de gebruikte gassen.

Daar de produktie van vibrationeel aangeslagen stikstof, die beperkend is voor de stralingsproductie, geschiedt door de elektronen in de ontleding, moet in eerste instantie een vergroting van de stroom tot een grotere stralingsproductie voeren.

Daar staat tegenover dat de kans op vibratieaanslag van een stikstofmolecuul door een elektron een scherp maximum vertoont bij een elektronenenergie van ca. 2,5 eV. Nu leidt in een mengsel $\text{CO}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$ het opvoeren van de stroom tot een verlaging van de elektronentemperatuur, zoals uit dubbel-sondemetingen gebleken is. Zijn aanvankelijk de condities zo dat een zo groot mogelijk deel van de elektronen een energie rondom 2,5 eV heeft, dan zal opvoeren van de stroom dus aldaar tot een lagere stralingsproductie leiden. Voegt men vervolgens helium aan het gasmengsel toe, dan stijgt, wanneer de stroomsterkte niet al te klein is, de elektronentemperatuur. De maximale stralingsproductie treedt dan op bij een hogere stroomsterkte en is groter dan voorheen.

De vermindering van de laserwerking bij aanwezigheid van bepaalde verontreinigingen wordt eveneens veroorzaakt door het optreden van een lagere elektronentemperatuur. De ionisatiepotentialen van deze verontreinigingen zijn nl. lager dan die van N_2 en CO_2 en bepalen voor een belangrijk deel de gasontladingscondities.

Enige experimentele afgesmolten CO_2 -lasers

Laser met variabele uitkoppeling

Voor het verkrijgen van een sterke laserbundel zijn, behalve het inversieproces, ook de uitkoppeling alsmede de geometrie van het gebied in de trilholtte waarin de laserwerking optreedt, van veel belang. Met deze geometrie hangen nl. de zg. laserpatronen samen, d.i. de ruimtelijke dichtheidsverdeling van de stralingsenergie in de bundel. De geometrie van de trilholtte wordt hoofdzakelijk bepaald door de kromtestraal van de gebruikte spiegels en hun onderlinge afstand. Ter beperking van de verliezen moeten de spiegels zo weinig mogelijk straling verstrooien en absorberen. Het meeste succes in het infraroodgebied heeft men tot nu toe gehad met spiegels van kwarts met een opgedampte goudlaag, die in het golflengtegebied rondom $10 \mu\text{m}$ ongeveer 98% reflecteren. In tegenstelling met spiegels met opgedampte diëlektrische lagen — aanvankelijk alleen toegepast voor lasers werkende in het gebied van de zichtbare straling — vertonen spiegels met een opgedampte goudlaag geen transmissie, zodat ze niet geschikt zijn voor uitkoppelen.

Aanvankelijk heeft men getracht het uitkoppelingsprobleem voor de infraroodlasers op te lossen door één van de goudspiegels te voorzien van een gat; dit werd dan afgesloten met een materiaal dat de infrarode straling doorlaat. Aan deze oplossing kleven twee ernstige bezwaren. In de eerste plaats bevordert zo'n gat het optreden van laserpatronen waarbij de grootste energiedichtheid in hoofdzaak *naast* het gat gevonden wordt, zodat het deel van de straling dat wordt uitgekoppeld, ver beneden het maximum blijft. Door geschikte keus van de kromtestraal van de spiegels kan men er overigens wel voor zorgen dat bij alle mogelijke laserpatronen een deel van de straling wordt uitgekoppeld [13]. Het tweede bezwaar is dat men bij het

werken met een uitkoppelgat altijd ernstige diffractie-verliezen heeft.

Bij de door ons ontworpen uitkoppeling die is toegepast in de laser van fig. 5 ontbreken deze nadelen [14]. Bij deze uitkoppeling zijn de verliezen nagenoeg nihil; het uitkoppelingspercentage kan men variëren van 0 tot ruim 50%. Zoals men ziet, vallen de begrenzingen van de optische trilholtte niet samen met de uiteinden van de ontladingsbuis; de linker spiegel staat daar een eindweegs vanaf. Het linker eind van de buis is afgesloten met een optisch vlak, planparallel germaniumplaatje waarvan de normaal met de optische as van het spiegelsysteem de Brewster-hoek insluit ($75^\circ 59'$). Daar germanium infrarode straling van $10,6\ \mu\text{m}$ vrijwel niet absorbeert, wordt straling waarvan het polarisatievlak loodrecht op het vlak van tekening staat, derhalve door het germaniumplaatje ongehinderd doorgelaten.

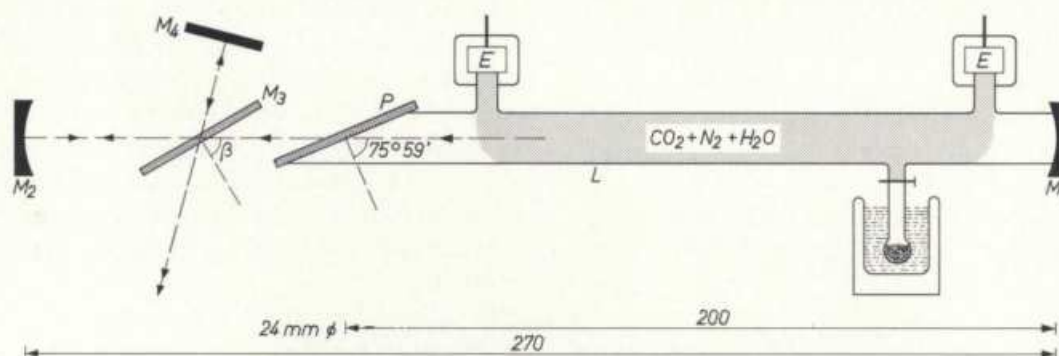


Fig. 5. Schematische voorstelling van experimentele afgesmolten CO₂-laser met variabele uitkoppeling. *L* laserbuis. *M*₁ en *M*₂ holle spiegels ($R = 240\text{ cm}$), die de trilholtte begrenzen. *P* planparallel germaniumplaatje, waarvan de normaal met de as van de buis de Brewster-hoek insluit. *M*₃ vlakke germaniumplaat, fungerend als uitkoppelspiegel; de reflexie varieert met de hoek β . *M*₄ vlakke spiegel. *E* cilindrische platinaelektrodes in zijbuisjes. Tussen deze elektrodes wordt een gasontlading onderhouden (geschaduwd).

Deze buis bevatte geen helium; tijdens de ontwikkeling ervan was de gunstige invloed van helium op de stralingsproductie nog niet gevonden.

Voor de uitkoppeling wordt een tweede germaniumplaatje gebruikt, dat zich eveneens binnen de trilholtte bevindt, maar buiten de buis. De hoek β waaronder de straling op dit uitkoppelplaatje valt, wijkt enkele graden af van de Brewster-hoek, zodat partiële reflexie optreedt en een gedeelte van de bundel de trilholtte verlaat. Dit plaatje reflecteert een des te grotere fractie van de opvallende straling naarmate de hoek β meer afwijkt van de Brewster-hoek. Met een laser volgens fig. 5 hebben we het lasermechanisme kwantitatief kunnen bestuderen [15].

Het is duidelijk dat een zelfde fractie wordt gereflecteerd van de straling die van spiegel *M*₂ terugkeert en die op het andere vlak van het plaatje invalt. Deze gereflecteerde straling gaat echter juist de andere kant op. Door het aanbrengen van een tweede vlakke spiegel *M*₄ kunnen eventueel de beide uitgekoppelde bundels worden samengevoegd.

Stelt men de hoek β in op een waarde die zeer dicht

bij de Brewster-hoek ligt en laat men vervolgens het verschil tussen beide hoeken geleidelijk toenemen, dan neemt ook de uitgekoppelde bundel toe in intensiteit. Op den duur echter neemt de intensiteit weer af. Als nl. de uitgekoppelde fractie van de straling een zekere grens overschrijdt, is de straling binnen de trilholtte niet langer in staat alle aangeslagen CO₂-moleculen tot emissie te brengen. Een deel van de in het gas aanwezige aanslag-energie komt dan vrij door spontane emissie en levert geen bijdrage tot de laserbundel. Het blijkt dat de laserbundel het sterkst is als β ongeveer 68° is; de reflexie is dan ca. 10%.

De ontladingsbuis van de in fig. 5 geschetste laser is gevuld met 2,5 torr stikstof, 1 torr CO₂ en ongeveer 0,2 torr waterdamp. De spiegels zijn zeer goed reflecterende goudspiegels, ieder met een kromtestraal van 240 cm. De afstand tussen beide spiegels kan wor-

den gevarieerd; de stralingsproductie is maximaal gebleken (nl. ca. 20 W) bij een afstand van 270 cm. De ontladingsbuis heeft een lengte van 200 cm en een diameter van 24 mm.

De partiële druk van de waterdamp kan worden gevarieerd van 10^{-3} torr tot 1 torr door in een zijbuisje een gedeelte van het aanwezige water uit te vriezen. In fig. 6 is uitgezet hoe voor een laser van dit type die gevuld is met 2,5 torr N₂ en 1 torr CO₂, het maximale uitgangsvermogen verloopt met de partiële druk van de waterdamp. De winst die het toevoegen van waterdamp oplevert, is duidelijk te zien.

[12] G. Moeller en J. Dane Rigden, Appl. Phys. Letters 7, 274, 1965.

[13] C. K. N. Patel, Appl. Phys. Letters 7, 15, 1965.

[14] W. J. Witteman en G. van der Goot, J. appl. Phys. 37, 2919, 1966 (no. 7). Deze uitkoppeling is eveneens toegepast in een laser voor plasmaonderzoek, zie: W. J. Witteman, A sealed-off Michelson type CO₂ laser for diagnostic studies in gaseous plasmas, verschijnt binnenkort in Appl. Phys. Letters.

[15] Zie het aangehaalde artikel [4].

Laser met planparallel spiegel-uitkoppelplaatje

De zojuist beschreven variabele, verliesvrije uitkoppeling, waarbij gebruik gemaakt is van het feit dat zeer zuiver germanium bij $10\text{ }\mu\text{m}$ nagenoeg geen absorptie vertoont, werkt uitstekend voor bundelintensiteiten kleiner dan 20 W . Bij grotere intensiteiten wordt de absorptie toch hinderlijk, doordat deze sterk toeneemt met stijgende temperatuur. De geringe temperatuurverhoging die een sterke bundel in het begin teweegbrengt, leidt tot een toeneming van de absorptie, waardoor de temperatuur nog verder stijgt, enz.

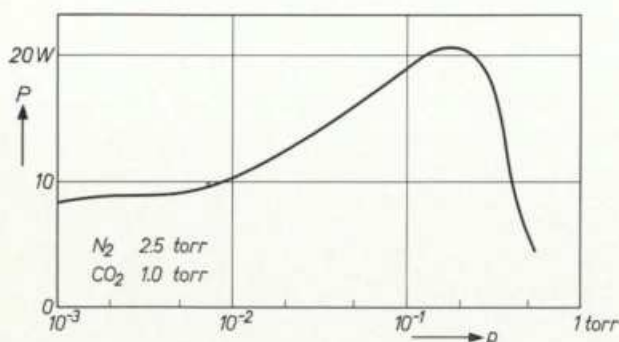


Fig. 6. Het maximale stralingsvermogen P van een CO_2 -laser volgens fig. 5 als functie van de partiële druk p van de waterdamp, bij de vermelde koolzuur- en stikstofdruk.

Een constructie die geschikt is voor lasers met een wat groter vermogen (maximaal ca. 100 W), is toegepast bij de in fig. 7 afgebeelde laser. Bij deze laser is de buis aan een eind (links in de figuur) eenvoudig afgesloten met een planparallel germaniumplaatje ter dikte van ca. 2 mm [16]. Dit plaatje is niet van een goudspiegel voorzien; de voorkant en de achterkant ervan dragen beide tot de reflexie bij. De teruggekaatste bundel is dus de resultante van de aan het voorvlak en aan het achtervlak gereflecteerde straling. De reflexie hangt derhalve af van de golflengte (frequentie) van de straling. In het ongunstigste geval is de reflexie nul, in het gunstigste 78% . De frequenties waarbij maximale reflexie wordt gevonden, liggen bij de genoemde dikte van het plaatje ca. $7,5 \times 10^{10}\text{ Hz}$ uiteen.

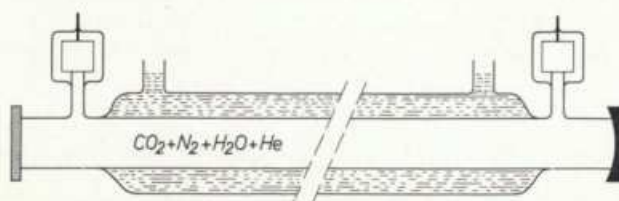


Fig. 7. Semi-confocale laser met een planparallel germaniumplaatje (links) als uitkoppelvenster. Met een 240 cm lange laser van dit type is een continu stralingsvermogen van 103 W bereikt en een bundeldivergentie van slechts 2×10^{-3} radiaal. Om de laserbuis bevindt zich een mantel voor waterkoeling.

Nu bedraagt de frequentie-afstand tussen twee laserovertgangen met opeenvolgend rotatiequantumgetal $5,5 \times 10^{10}\text{ Hz}$. Dit betekent dat er onder de vele frequenties die in het vibratie-rotatiespectrum voorkomen, slechts enkele zijn waarvoor het germaniumplaatje sterk reflecteert en waarvoor tevens de overbezetting van het bovenniveau flink groot is (fig. 3).

Daar ook de optische trilholtte van de laser selectief werkt, komt het niet zelden voor dat men in de laserbundel slechts straling van één golflengte aantreft. Deze golflengte wordt bepaald door de dikte van het planparallelle plaatje en de lengte van de laser. Zoals in het vorige hoofdstuk is uiteengezet, heeft een en ander geen nadelig effect op de intensiteit van de bundel; alle in de rotatieniveaus opgeslagen energie komt uiteindelijk beschikbaar voor gestimuleerde emissie.

De uitkoppeling met een vlak germaniumplaatje is niet alleen eenvoudig en goedkoop, maar levert ook een evenwijdige laserbundel met zeer geringe divergentie. Bij een laser volgens fig. 7 met een lengte van 240 cm , een interne diameter van 22 mm en een kromtestraal van de goudspiegel van ongeveer 480 cm (een zg. semi-confocaal systeem) werd een divergentie gemeten van slechts 2×10^{-3} radiaal. Het continue stralingsvermogen van deze laser, die is afgebeeld in fig. 8, bedraagt 103 W .

Het is duidelijk dat bij deze laserconstructie, waarbij de spiegels direct op de buis gekit worden, de twee eindvlakken van de buis zeer goed parallel en loodrecht op de as geslepen moeten worden. Toch kan men hierbij een afwijking van ongeveer 10^{-3} radiaal toelaten; deze kan nl. worden gecorrigeerd door de laserbuis in het midden een weinig door te buigen. Men verkrijgt door het direct aanbrengen van de spiegels aan de buis een bijzonder stabiel geheel.

Bij lasers waarvan de buis langer dan ca. 2 m is, is er aan het gebruik van een vlakke uitkoppelspiegel een nadeel verbonden. Het ruimtelijk gebied van de laserpatronen valt daarbij nl. maar gedeeltelijk samen met het gebied waarin zich het actieve medium bevindt. Anders gezegd: de „vulfactor” is lang geen 100% . Een gedeelte van het actieve medium kan dus niet bijdragen aan de stralingsproductie, zodat men met lange lasers bij gebruik van een vlakke uitkoppelspiegel niet het hoogst mogelijke rendement kan bereiken.

Lasers met twee holle spiegels

Een veel hogere vulfactor dan bij gebruik van een vlakke uitkoppelspiegel kan men verkrijgen door met twee holle spiegels te werken (fig. 9). Bij lange lasers met twee holle spiegels vindt men in het algemeen dan ook een grotere bundelintensiteit en een hoger rendement; bij korte lasers is het verschil niet noemenswaard.

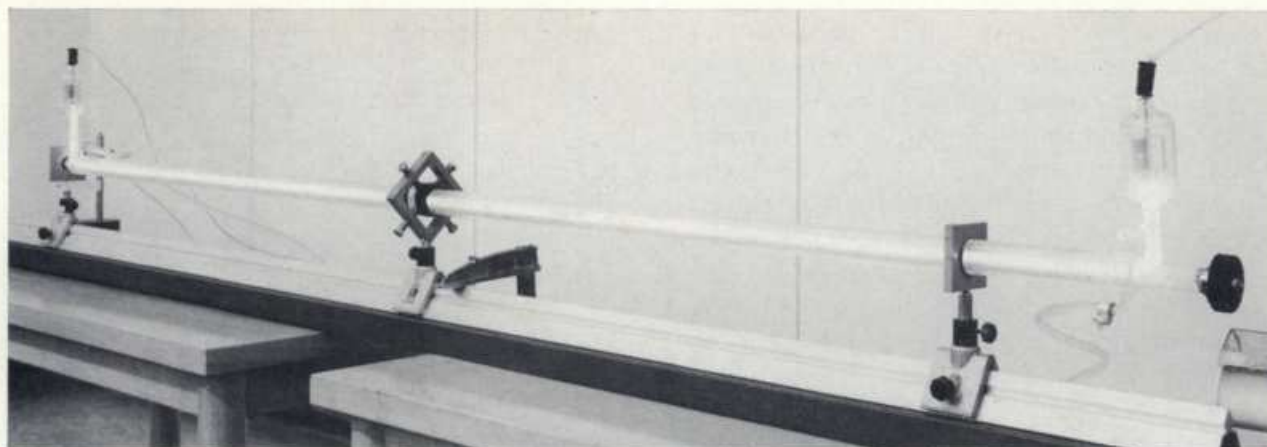


Fig. 8. Werkende CO₂-laser van het type van fig. 7; vgl. ook de titelfoto. Het spiegel-uitkoppelplaatje van germanium bevindt zich aan het linker uiteinde, de gebogen goudspiegel rechts.

Natuurlijk kan men niet zonder meer een holle germaniumspiegel gebruiken, omdat daarvan maar één oppervlak reflecteert zodat de reflexie te zwak is (ten hoogste 36%). Ter verbetering van de reflexie is het noodzakelijk diëlektrische lagen op het holle oppervlak aan te brengen.

Toch is dit niet voor alle gevallen de gunstigste oplossing. Bij lasers die een vermogen van meer dan 100 W leveren — en dat zijn juist die waarvoor vlakke spiegels niet geheel voldoen — loopt men vast op de sterke temperatuurafhankelijkheid van de infraroodabsorptie door germanium, zoals hierboven beschreven is. Voor dergelijke lasers hebben we een uittreevenster van zinkselenide gebruikt. Weliswaar heeft zinkselenide bij kamertemperatuur een grotere absorptiecoëfficiënt dan germanium, maar de temperatuurafhankelijkheid daarvan is veel zwakker.

Met een laser volgens fig. 9, uitgerust met een uittreevenster van zinkselenide (lengte van de buis 300 cm, diameter 2 cm, kromtestraal van de spiegels 480 cm), hebben we een vermogen van 160 W bereikt. De ZnSe-spiegel van deze laser had een reflexie van ca. 60%. De andere spiegel was van met goud bedekt aluminium en had een reflexie van ca. 98%.



Fig. 9. Laser voor groot vermogen met een uittreevenster, tevens spiegel, van zinkselenide en met coaxiaal in de buis opgestelde elektrodes. De absorptiecoëfficiënt van ZnSe is klein en hangt slechts weinig van de temperatuur af. De reflexie van de ZnSe-spiegel is ca. 60%. Met een 300 cm lange laser van dit type is een continu uitgangsvermogen van 160 W bereikt.

Verdere constructiedetails en eigenschappen van de beschreven lasers

Aan de constructie van de *elektrodes* worden bij afgesmolten CO₂-lasers bijzondere eisen gesteld. Hete katodes, die bij lasers gevuld met edelgasen met succes zijn gebruikt, komen niet in aanmerking, omdat het gasmengsel in een werkende CO₂-laser componenten bevat die chemisch zeer reactief zijn (b.v. vrije stikstof- en zuurstofatomen). Men moet dus met koude katodes werken, maar ook dan nog moet er bijzondere zorg aan besteed worden. We hebben zeer gunstige ervaringen opgedaan met cilindrische elektrodes van platina. Deze elektrodes werden aanvankelijk aangebracht in zijbuisjes van de laserbuis (zie fig. 4 en 7). Het nadeel van deze oplossing is dat de spanningsdaling over de zijbuisjes een ongunstig effect heeft op het rendement. Een ander nadeel is het afbuigen van de gasontlading bij de zijbuisjes. De stralen ervaren daardoor, wanneer ze in de buurt van de elektrodes de gasontlading verlaten, een verandering van brekingsindex welke een afbuiging van de stralengang veroorzaakt die als verliesfactor werkt.

Deze bezwaren vervallen als men de elektrodecilinders coaxiaal in de laserbuis aanbrengt. Een laser met een dergelijke elektrodeconstructie ontmoetten we reeds in fig. 9. Met een laser van dit type, waarvan de buis 150 cm lang is, de interne diameter 21 mm bedraagt en de kromtestraal van de spiegels 240 cm, hebben wij een maximaal uitgangsvermogen van 65 W verkregen.

Behalve door de gassamenstelling, de spiegelconfiguratie en de elektrodes wordt het vermogen van de laserstraal ook bepaald door de dimensies van de laserbuis. Globaal gesproken is het uitgestraalde vermogen even-

[16] W. J. Wittman, IEEE J. of quantum electronics QE-2, 375, 1966 (no. 9).

redig met de lengte van de buis. De stralingsproductie per volume-eenheid verandert bij variatie van de buislengte dan ook weinig. Kijkt men nauwkeuriger, dan blijkt het vermogen iets sterker dan evenredig met de buislengte toe te nemen. Dit komt doordat de meeste verliesposten bij grotere lengte van de buis relatief wat kleiner zijn.

De diameter blijkt niet zo'n grote invloed op het vermogen te hebben. Sommige processen worden door verandering van de diameter gunstig beïnvloed, andere ongunstig. Zo is het ter verkrijging van een sterke inversie van de niveaubezetting gunstig om de diameter groot te kiezen. Een vibrationeel aangeslagen stikstofmolecuul wordt nl. gemakkelijk gedeëxciteerd wanneer het met de wand van de laserbuis in aanraking komt. Het gevolg hiervan is dat de inversiedichtheid aan de wand van de laser lager is dan langs de as van de buis. Dit is relatief minder nadelig naarmate de buisdiameter groter is. Helaas echter neemt de elektronentemperatuur, en daarmee de efficiëntie van de stikstofaanslag, af met toenemende buisdiameter. Bij sterke vergroting van de diameter loopt men bovendien kans dat de gasontlading instabiel wordt. Verder hebben we gevonden dat bij een kleine diameter het maximale vermogen bij grotere partiële drukken van de gascomponenten bereikt wordt. De stralingsdichtheid is daardoor groter naarmate de diameter kleiner is. In de praktijk is gebleken dat de optimale waarde van de buisdiameter 20 à 22 mm bedraagt.

De gunstigste ontladingscondities vindt men, naar ons gebleken is, in een *gelijkstroomontlading*. Varieert men het stralingsvermogen, door variatie van de stroomsterkte, dan blijkt dat het rendement bij lagere stroomsterkte hoger is. Voor een laserbuis volgens fig. 9 met de zojuist genoemde afmetingen zijn het stralingsvermogen en het daarbij behorende rendement als functie van de ontladingsstroom weergegeven in fig. 10. Het theoretische maximale rendement (d.i. het quotiënt van de energie van een stralingsquantum en die van een aanslagquantum) bedraagt 41%. Experimenteel vinden we, zoals uit fig. 10 blijkt, een maximum van 21%. Dit betekent dat, in het gunstigste geval, van het vermogen dat aan de ontlading wordt toegevoerd, meer dan de helft gebruikt wordt voor aanslag van het bovenniveau. Gezien het feit dat een deel van het toegevoerde vermogen beschikbaar moet zijn voor het instandhouden van de gasontlading (ionisatie, enz.), is dit een uitermate gunstig percentage. We hebben bij deze laser dus te maken met een bijzonder interessant aanslagmechanisme.

Vatten we het bovenstaande samen, dan blijkt dat de kwaliteiten van een CO₂-laser in de eerste plaats gekarakteriseerd worden door het vermogen per cm³ gas en het rendement. Laatstgenoemde grootheid ligt voor

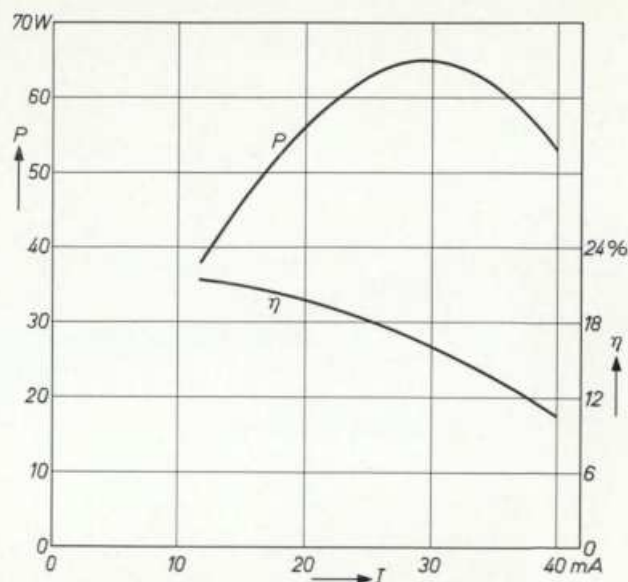


Fig. 10. Het stralingsvermogen P en het rendement η als functie van de stroomsterkte I in de gasontlading voor een 150 cm lange laser volgens fig. 9.

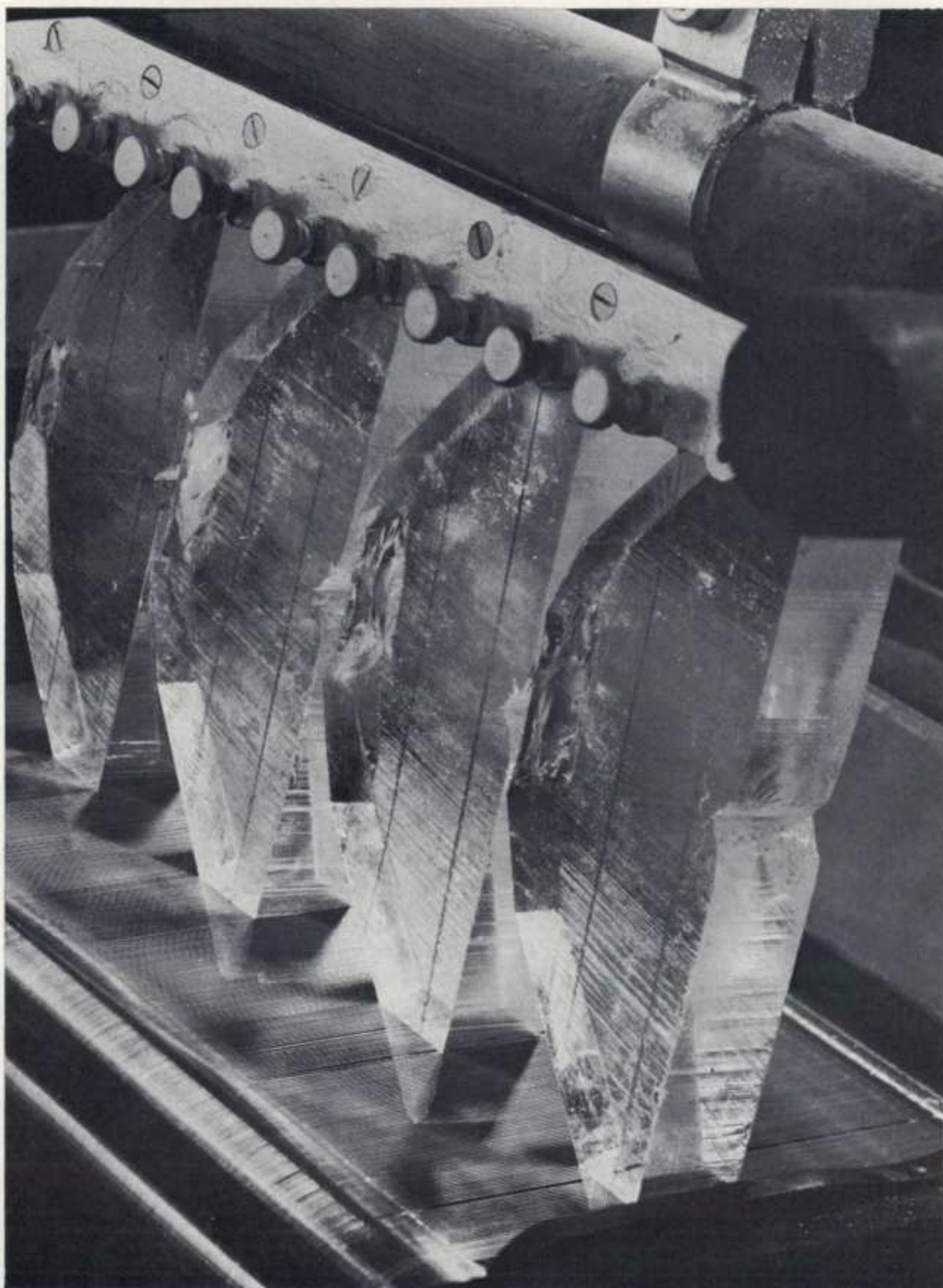
onze lasers reeds vrij dicht bij het theoretische maximum. Het vermogen van de laserbundel kan men naar believen opvoeren door de buis te verlengen. Wel vervalt men dan aldaar in instrumenten die niet of nauwelijks verplaatsbaar zijn: een laserbundel van 1000 W vereist een buislengte van 15 à 20 m! Om praktische redenen zijn wij tot nu toe dan ook niet verder gegaan dan 200 W.

Samenvatting. Infraroodlasers (golflengte 10,6 μm) die werken met een hoog rendement en die een zeer sterke laserbundel leveren, kan men verkrijgen door gebruik te maken van vibratirotatieovergangen van kooldioxide. De excitatie van het bovenniveau (00⁰1) geschiedt door middel van een gasontlading en wordt sterk bevorderd door de aanwezigheid van stikstof, waarvan de moleculen gemakkelijk vibrationeel geëxciteerd worden en hun vibratie-energie gemakkelijk aan CO₂ afstaan. Als benedenniveau fungeert de trillingstoestand 10⁰0. Ook overgangen naar 02⁰0 zijn mogelijk, maar deze worden sterk onderdrukt doordat beide toestanden gemakkelijk in elkaar overgaan. Men heeft gevonden dat de ontvolking van het benedenniveau sterk bevorderd wordt door toevoegingen van waterdamp; een watermolecuul neemt de vibratie-energie van de toestand 10⁰0 van CO₂ gemakkelijk over en relaxeert snel. Als de gasvulling waterdamp bevat, kan men de laserbuis zonder schade afsmelten, omdat waterdamp bovendien de levensduur van een gesloten laser kan verlengen tot meer dan 1000 uur; men hoeft dan niet te werken met een buis waar het gas doorheen stroomt. Toevoegen van helium verbetert de gasontladingscondities. Het vulgas heeft dus vier componenten: CO₂, N₂, H₂O en He.

Er zijn verscheidene soorten experimentele afgesmolten CO₂-lasers gemaakt.

- 1) Met variabele uitkoppeling door middel van een germaniumspiegel *buiten* de laserbuis; speciaal geschikt voor onderzoek.
- 2) Met als venster een planparallel germaniumplaatje loodrecht op de as van de buis en met één holle spiegel.
- 3) Met twee holle spiegels, waarvan één van zinkselenide voor de uitkoppeling; speciaal voor zeer groot vermogen. De bundelintensiteit is ongeveer evenredig met de buislengte; bij een buis met twee holle spiegels is 160 W bereikt bij een lengte van 3 m. De optimale diameter is 20-22 mm. Het hoogste rendement is 21% (het absolute maximum is 41%).

Het „zagen” van kristallen voor groeftasters



Seignettezout (kaliumnatriumtartraat) vertoont een sterk piëzo-elektrisch effect. Hierop berust het gebruik van dit materiaal in groeftasters, die bij het afspelen van een grammofoonplaat de mechanische trillingen omzetten in een elektrisch signaal. In de groeftaster wordt daartoe de aftastnaald mechanisch verbonden met een kristalelement, dat is opgebouwd uit twee op elkaar gelijkde dunne plaatjes seignettezout voorzien van elektrodes.

Voor het maken van de kristalplaatjes, zoals dat geschiedt in de vestiging te Hasselt (België) van Philips' Hoofdindustrie-groep Radio-, Grammofoon- en Televisieapparaten, kweekt men seignettezoutkristallen met een gewicht van ca. 1,5 kg op een entkristal door een verzadigde waterige oplossing langzaam af

te koelen (in ca. 25 dagen). Van deze kristallen zaagt men eerst plakken van 18 mm breedte, waarvan er op de foto vier zijn te zien. Deze plakken worden vervolgens verzaagd tot strippen van 0,3 mm dikte. Dit gebeurt niet door zagen in de gebruikelijke zin, maar door plaatselijk oplossen. De kristalplakken worden licht aangedrukt tegen een reeks evenwijdig gespannen metaaldraden die een zaagbeweging uitvoeren, terwijl zij voortdurend door viltten strippen worden schoongemaakt en met vers water bevochtigd. Door deze eenvoudige werkwijze vermijdt men het ontstaan van barsten, die bij mechanisch zagen als gevolg van plaatselijke temperatuurverschillen kunnen optreden. Uit de verkregen strippen zaagt men op soortgelijke wijze de gewenste plaatjes.

Energiepapier

Voor snoerloze apparaten bestaat een grote en nog steeds toenemende belangstelling. Voor de voeding van deze apparaten staan in principe zowel droge batterijen als accu's ter beschikking. De keuze tussen deze twee typen stroombronnen wordt bepaald door een complex van factoren.

Daar zijn in de eerste plaats de overwegingen die samenhangen met het comfort dat met snoerloze apparaten wordt nagestreefd. Wat dit aangaat, is de droge batterij de aantrekkelijkste mogelijkheid. Een „herladen" gebeurt eenvoudig door een vervanging. De accu vraagt vroeg of laat om de beschikking over netspanning en laadaggregaat, eist soms onderhoud, en kan pas na een vrij lange laadtijd opnieuw volledig worden gebruikt. Een bezwaar van zowel batterij als accu is dat niet eenvoudig kan worden nagegaan hoeveel energie op elk moment nog beschikbaar is.

In technisch opzicht is de accu superieur aan de droge batterij. Het vermogen dat bij een gegeven volume of gewicht kan worden afgegeven is vele malen groter en de spanningsdaling tijdens de ontlading verloopt aanmerkelijk vlakker.

Van een economisch standpunt beschouwd, is de vraag van belang in hoeverre de relatief hoge aanschaffingskosten van de accu — waarbij die van de acculader niet vergeten mogen worden — gecompenseerd worden door het voordeel dat de accu herhaaldelijk opnieuw geladen kan worden.

Al deze factoren bepalen mede hoe de keuze tussen batterij en accu in de praktijk uitvalt — er is niet één enkel criterium dat hierbij de doorslag geeft. Voor apparaten met een zeer gering vermogen (zoals een snoerloze klok, ca. 0,001 W) komt alleen de droge batterij in aanmerking. Apparaten die grotere vermogens nodig hebben (b.v. een draagbaar televisietoestel van ca. 12 W), vragen om accuvoeding. Liggen de vereiste vermogens in de buurt van 1 W, dan worden zowel batterijen als accu's toegepast (zie b.v. de „Philishave" scheerapparaten SC 7970 en SC 8020).

Samenvattend zien we ook dat een combinatie van gunstige eigenschappen zoals een gemakkelijk herladen, een zichtbare energievoorraad, een hoge belastbaarheid, een vlakke ontladingscurve en een niet te hoge prijs, noch met de normale droge batterij, noch met de accu te verwezenlijken is.

De batterij-uitvoering die we hier gaan beschrijven en die we zullen aanduiden als energiepapierbatterij, blijkt tot op zekere hoogte deze gunstige eigenschappen in zich te verenigen.

In elke chemische batterij treffen we een systeem aan

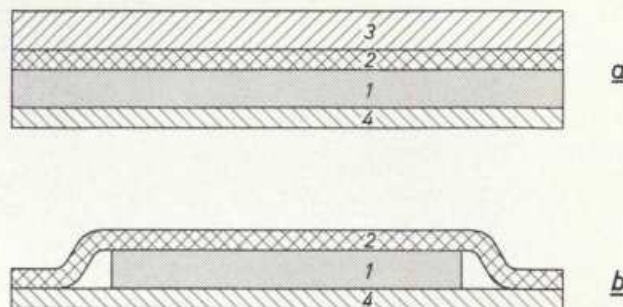


Fig. 1. a) De opbouw van de energiepapierbatterij. 1 het eigenlijke energiepapier, een folie die kaliumpersulfaat, koolpoeder en papiervezel bevat. 2 een droge papierfolie, die keukenzoutkristallen bevat. 3 een zink- of magnesiumplaat. 4 een geleidende folie. b) Men kan 1, 2 en 4 tot een sandwich verwerken.

dat bestaat uit twee of meer stoffen die met elkaar kunnen reageren. Opzet is nu dat de bij de reactie betrokken elektronen niet rechtstreeks van de ene stof naar de andere overgaan (wat vrijwel uitsluitend warmte zou opleveren), maar worden gedwongen „buitenom" te lopen, via een stroomketen, om aldus in de belasting nuttige arbeid te verrichten.

In de bekende droge batterij is de zinkmantel elektroendonator. Via de uitwendige stroomketen bereiken de elektronen de bruinsteenmassa, die als elektronenacceptor fungeert. In de bruinsteenmassa is kool aanwezig ter verbetering van het geleidingsvermogen. Zink en bruinsteenmassa zijn gescheiden door een elektrolytoplossing, waarin de gezamenlijke ionen een stroom dragen ter grootte van de elektronenstroom.

De combinatie donor/acceptor/elektrolyt vinden we bij de energiepapierbatterij als resp. zink of magnesium, kaliumpersulfaat (gemengd met koolpoeder) en keukenzoutoplossing.

De uitvoeringsvorm van de energiepapierbatterij is evenwel een geheel andere dan die van de droge batterij, zie fig. 1. We onderscheiden:

- 1) het eigenlijke energiepapier, dat is een uit kaliumpersulfaat en fijn verdeelde kool bestaande droge folie, die een zekere flexibiliteit heeft doordat er een bepaald percentage papiervezel in is verwerkt;
- 2) een droge papierfolie, b.v. filtreerpapier, waarin kristalletjes keukenzout zijn opgenomen, en dat voor het gebruik bevochtigd wordt;
- 3) een zink- of magnesiumplaat.

Men kan 1 en 2 met een geleidende folie combineren tot een goed hanteerbare sandwich. De zink- of magnesiumplaat kan ingebouwd zijn in het toestel dat met energiepapier gevoed moet worden. Een complete uitvoering, in casu voor een experimenteel scheer-toestel, is weergegeven in fig. 2 en 3. In de batterij-

houder van dit scheertoestel past een sandwich met een energie-inhoud, juist voldoende voor één keer scheren (het toestel is dus gemakkelijk te herladen). Aan het stapeltje sandwiches dat men in voorraad heeft, ziet men precies hoeveel malen men zich nog kan scheren (zichtbare energievoorraad). De kleine afmetingen van de sandwich (45×45 mm, ca. 1 mm dik, gewicht ca. 2 gram) demonstreren de hoge belastbaarheid, als men bedenkt dat het scheerapparaat ca. 1 W vraagt. Met magnesium als donor wordt het grootste deel van de energie geleverd bij een klemspanning tussen 1,9 en 1,5 V (vlakke ontladingscurve). De grondstoffen zijn ongeveer even duur als die van een droge batterij. De energie-inhoud per cm^3 van de energiepapierbatterij is ongeveer gelijk aan die van een droge batterij.

Van tijd tot tijd moet bij de geschetste uitvoering natuurlijk een nieuwe laag zink of magnesium worden aangebracht. Magnesium is vrij sterk onderhevig aan corrosie. In een andere experimentele uitvoering wordt dit materiaal als een foelie aan de sandwich gehecht, die dan telkens met de sandwich wordt verwisseld.

Energiepapier wordt pas bevochtigd op het moment dat men het gaat gebruiken. Voortijdige aanraking met water schaadt de houdbaarheid. In dit opzicht is energiepapier veel gevoeliger dan een „droge” batterij. Als men energiepapier echter hermetisch van de lucht afsluit, blijkt na 8-10 maanden bewaren bij 45°C de energie-inhoud met slechts 10% afgenomen te zijn.

De hoge belastbaarheid, die zeker een factor vijf groter gesteld mag worden dan die van een normale

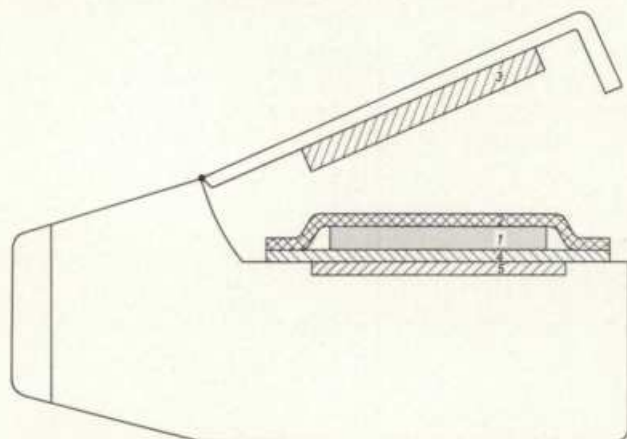


Fig. 2. Schematische tekening van een scheerapparaat dat gevoed wordt met energiepapier. De zink- of magnesiumplaat 3 is hier vast aangebracht, evenals een elektrode 5 waarmee de stroom aan de andere pool wordt afgenomen. Voor elke scheerbeurt wordt een energiepapiersandwich in de houder gebracht, de laag 2 wordt via een opening in het midden bevochtigd en vervolgens heeft men slechts de houder dicht te klemmen om het scheerapparaat gedurende 6 à 7 minuten te laten functioneren.

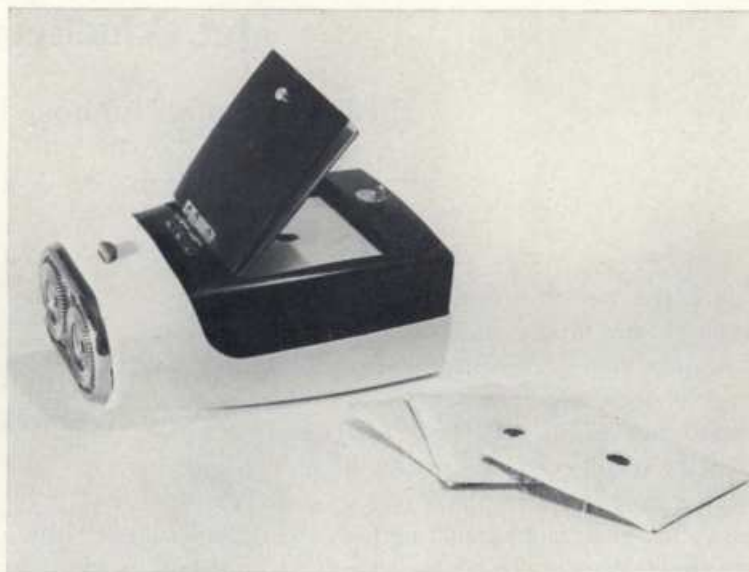


Fig. 3. Experimentele uitvoering van het scheerapparaat met energiepapierbatterij volgens fig. 2.

droge batterij, vloeit voor een deel voort uit de uitvoering als dunne plaat: de inwendige weerstand wordt daarmee tot een minimum teruggebracht. Daarnaast telt ook het feit dat kaliumpersulfaat oplosbare reactieproducten geeft, zodat weinig of geen hinder van afscherming van de koolmassa wordt ondervonden.

De hoge belastbaarheid van energiepapier maakt het in het algemeen geschikt voor toepassingen waarbij gedurende korte tijd een groot vermogen wordt gevraagd. Deze behoefte bestaat bij voorbeeld wanneer de accu van een auto is leeggeraakt. Met een passende hoeveelheid energiepapier blijkt men in zo'n geval de automotor met succes te kunnen starten. Men hoeft de accu hiervoor niet van zijn plaats te verwijderen, maar men schakelt de energiepapierbatterij eenvoudig parallel met de accu. Voorwaarde voor de mogelijkheid tot starten is natuurlijk dat de elektrische installatie van de auto als geheel in goede conditie verkeert.

Ook kan gedacht worden aan toepassingen voor speelgoed. De vereiste hoeveelheid energie hiervoor is in het algemeen niet groot, en men kan dan van de hoge belastbaarheid van energiepapier gebruik maken door de voeding heel licht uit te voeren. Door te werken met kleine „energiepakketjes” beperkt de gebruiker bovendien de onvermijdelijk met spelen gepaard gaande verspilling van energie — waardoor dus een vermindering van de gebruikskosten mogelijk is.

P. A. Boter
M. D. Wijnen

P. A. Boter en dr. M. D. Wijnen, medewerkers van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

Het skineffect

II. Het skineffect bij hoge frequenties

H. B. G. Casimir en J. Ubbink

In deel I van dit artikel^[1] werd het skineffect beschouwd voor diverse situaties, zonder een beperking te noemen voor het frequentiegebied. Bij de daar besproken stroomvoerende geleiders is het min of meer vanzelfsprekend dat men denkt aan lage of radio-frequenties. Wordt echter de frequentie, of ook het geleidingsvermogen van het metaal, steeds groter, dan treden op den duur complicaties op in de theorie van het skineffect; deze vormen het onderwerp van dit tweede deel.

Om deze complicaties te bestuderen, is het nuttig een eenvoudige situatie te kiezen. Deze ligt voor de hand als men bedenkt dat bij het toenemen van de frequentie de elektromagnetische velden en stromen in het metaal zich in een steeds dunnere laag onder het oppervlak concentreren, terwijl buiten het metaal de eindigheid van de lichtsnelheid merkbaar wordt: het golfkarakter van het elektromagnetische veld komt duidelijker naar voren en de golflengte wordt steeds kleiner. Worden nu de skindikte in het materiaal en de golflengte erbuiten klein ten opzichte van de kleinste kromtestraal van het oppervlak, dan ontstaat een typisch „optische” situatie: in essentie heeft men een elektromagnetische golf die op een oppervlak valt. Terloops zij opgemerkt dat de microgolven hier een tussengebied beslaan: in een laboratoriumopstelling is de golflengte van dezelfde orde van grootte als de opstelling, hoewel de skindikte relatief al zeer klein is; dit reeds bij veel lagere frequenties. De eenvoudigste situatie die men nu kan kiezen is die waarbij een vlakke elektromagnetische golf loodrecht valt op het vlakke oppervlak van een metaal. Voor de eenvoudigste golf zijn E , H en de voortplantingsrichting onderling loodrecht. We zullen in het vervolg steeds een coördinatensysteem kiezen als in fig. 1 met de z -as loodrecht op het oppervlak (metaal voor $z > 0$), E en J langs de x -as, H langs de y -as. E , J en H hangen dan alleen af van z (en van t volgens $\exp j\omega t$).

Het klassieke skineffect is in deze situatie zeer eenvoudig te beschrijven. De Maxwell-vergelijkingen (I,1) en (I,2) leveren nu, met $J = \sigma E$ en met weglating van de verschuivingsstroom, voor de velden in het metaal:

$$-\partial H / \partial z = \sigma E, \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$\partial E / \partial z = -j\omega \mu H. \quad \dots \dots \dots (2)$$

De oplossing hiervan is weer:

$$E/E_0 = J/J_0 = H/H_0 = \exp [-(1+j)z/\delta_k], \quad \dots (3)$$

waarin de index 0 slaat op de waarde aan het oppervlak, en waarin δ_k weer de in (I,10) gedefinieerde klassieke skindikte voorstelt:

$$\delta_k^2 = 2/\omega \mu \sigma. \quad \dots \dots \dots (4)$$

In het eerste deel zouden we ons, indien gewent, hebben kunnen behelpen met een beeld van de „stroomdragende substantie” als een continu traagheidsloos fluïdum. De genoemde complicaties zijn nu een direct gevolg van het tekortschieten van dit beeld: de traagheid van de elektronen leidt tot de relaxatie-effecten, terwijl bij het anomale skineffect het deeltjeskarakter duidelijk naar voren komt: de skindikte wordt kleiner dan de vrije weglengte van de elektronen.

De aard van de complicaties kan men gemakkelijk overzien als men zich de geleiding als volgt voorstelt. De elektronen schieten door elkaar met willekeurig gerichte snelheden ter grootte v . De stroom wordt gedragen door een relatief kleine, gerichte, component. De weerstand ontstaat doordat de elektronen botsen; de tijd tussen twee botsingen is de relaxatietijd τ , en de elektronen hebben een vrije weglengte $l = v\tau$. We vergelijken nu drie lengtes met elkaar: de vrije weglengte l , de skindikte δ , en de afstand die een elektron in $(1/2\pi) \times$ een periode van het wisselveld aflegt, v/ω .

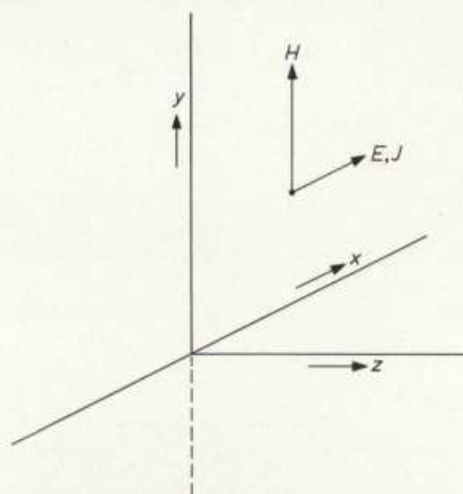


Fig. 1. Het coördinatensysteem. Het (x,y) -vlak is het scheidingsvlak tussen vacuüm (links, $z < 0$) en metaal (rechts, $z > 0$). Een elektromagnetische golf valt van links op het oppervlak. E en J zijn langs de x -as gericht, H langs de y -as.

(N.B. het vergelijken van l met v/ω is equivalent met het vergelijken van $\omega\tau$ met 1.)

De verschillende grensgevallen die zich kunnen voordoen zijn in fig. 2 in beeld gebracht. Bij lage frequenties en een niet te groot geleidingsvermogen heeft men geval A: $l \ll \delta$ en $l \ll v/\omega$. Hier treedt het klassieke skineffect op. Het elektron ondergaat vele botsingen tijdens zijn verblijf in de skinlaag en binnen een periode van het wisselveld. Verhoogt men de frequentie, dan worden δ en v/ω kleiner, verhoogt men het geleidings-

relaxatie noemen, omdat de stroom, die in A in fase is met het veld, als gevolg van de traagheid van de elektronen bij toenemende frequenties achterblijft, en in B vrijwel 90° in fase achter is bij het veld. In D heeft men het *anomale skineffect*: l is groter dan δ geworden. De opvallende straling wordt hier sterker geabsorbeerd dan men met de theorie van het klassieke skineffect zou berekenen; dit effect is enigszins verwant met de grotere soortelijke weerstand in laagjes die dunner zijn dan de vrije weglengte. Het gebeuren in de skinlaag en daarmee

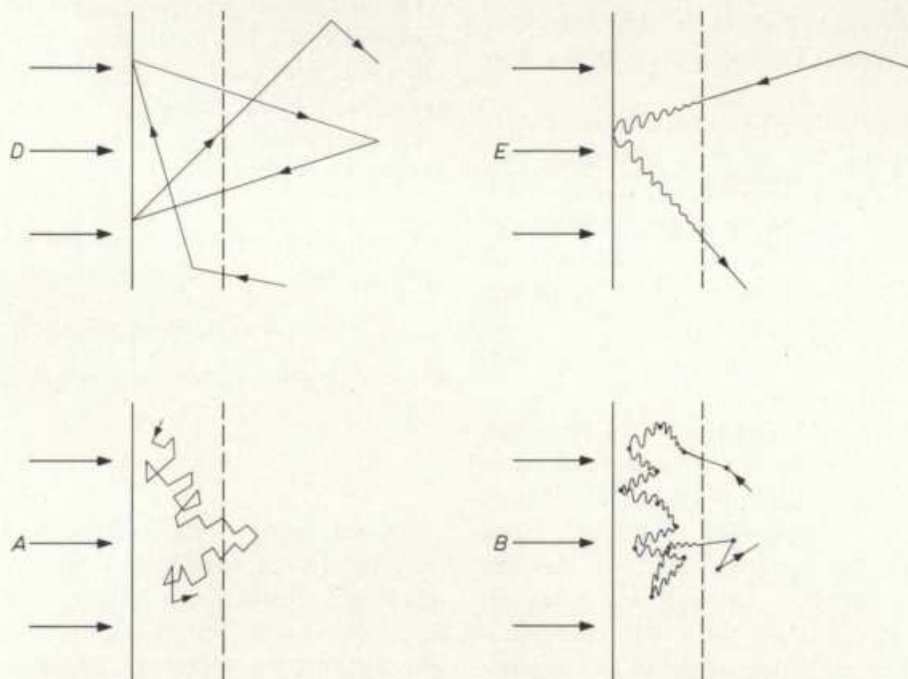


Fig. 2. Schets van de baan van een elektron in een metaal in en nabij de skinlaag, in vier extreme gevallen. De stippellijn markeert de skinlaag. De knikpunten representeren botsingen, de slingerlijntjes de slingerbeweging van het elektron ten gevolge van het wisselveld, en de pijlen de opvallende elektromagnetische golven.

- A) $l \ll \delta$ en $l \ll v/\omega$ (klassiek skineffect)
 B) $v/\omega \ll l \ll \delta$ (relaxatie)
 D) $\delta \ll l$ en $\delta \ll v/\omega$ (anomaal skineffect)
 E) $v/\omega \ll \delta \ll l$ (anomale reflexie)

l is de vrije weglengte, δ de skindikte en v/ω de afstand die een elektron in $(1/2\pi) \times$ een periode van het wisselveld aflegt.

vermogen, dan wordt l groter en δ kleiner. In beide gevallen verlaat men ten slotte het gebied van het klassieke skineffect; men komt òf in B terecht, waar $v/\omega \ll l \ll \delta$ is, òf in D, waar $\delta \ll l$ en $\delta \ll v/\omega$ is. In B ondergaan de elektronen nog vele botsingen tijdens hun verblijf in de skinlaag, maar tussen twee botsingen liggen vele periodes van het wisselveld. De botsingen zijn nu van weinig belang voor het wisselveld, het ziet in eerste instantie een laag van vrije elektronen; in nulde benadering reflecteren deze de opvallende golf geheel. Dit is de reflexie die karakteristiek is voor metalen in het optische gebied. De skindikte is hier onafhankelijk zowel van ω als van τ . Men kan B een geval van *extreme*

de absorptie en reflexie worden in het extreme geval onafhankelijk van l , dus onafhankelijk van het laag-frequente geleidingsvermogen van het metaal. Laat men vanuit D de frequentie toenemen of vanuit B de vrije weglengte, dan komt men in E, waar $v/\omega \ll \delta \ll l$ is. Dit geval is zeer verwant aan B: ook hier ziet het veld in grote lijnen een laag van vrije elektronen, en de reflexie is zeer sterk. Men noemt E een geval van *anomale reflexie*; de geringe absorptie die nog optreedt

[1] H. B. G. Casimir en J. Ubbink, Het skineffect, I. Inleiding; de stroomverdringing in diverse situaties, Philips techn. T. 28, 173-185, 1967 (no. 6). Dit deel wordt in het volgende aangehaald met I; met (I,1), (I,2), ... wordt naar de vergelijkingen in I verwezen.

moet in verband gebracht worden met de botsingen aan het oppervlak, en niet, zoals in B, met de „normale” botsingen in de materie.

In deze vier gevallen kan men de verschuivingsstroom wel verwaarlozen. Neemt vanuit B of E de frequentie nog verder toe, dan wordt de verschuivingsstroom in de Maxwell-vergelijking (I,1) relatief steeds groter. Bij de zg. plasmafrequentie zijn de twee termen in het rechter lid van (I,1) even groot. Voor nog grotere frequenties wordt het niet aan het oppervlak teruggekaatste vermogen niet in een dunne laag gedissipeerd, maar doorgelaten in de vorm van lopende golven, te vergelijken met de lichtgolven in de vrije ruimte: er vindt *transmissie* plaats. Er is dan geen sprake meer van een skineffect.

In het navolgende zullen we op de hier aangestipte effecten nader ingaan. We verwijzen hier reeds naar de figuren 11 en 12, die de combinaties van ω en τ laten zien waarvoor de besproken grensgevallen optreden. C is daarin het transmissiegebied. Aan de hand van fig. 12 wordt in het laatste hoofdstuk besproken met welke gevallen een specialist als de radiotechnicus of de opticus te maken kan krijgen, en welke voor hem van geen belang zijn.

Voordat we de genoemde effecten nader behandelen, stellen we nog twee punten aan de orde. In de eerste plaats komen er in de optische beschouwingwijze, en ook al in het microgolvengebied, enkele begrippen naar voren die dienstig zijn om er de uitkomsten van metingen in uit te drukken, met andere woorden om het metaaloppervlak in relatie tot opvallende elektromagnetische golven te karakteriseren. In het volgende hoofdstuk definiëren we deze begrippen, zoals b.v. de complexe brekingsindex en de complexe skindikte, nader en gaan we kort op hun onderlinge samenhang in. In de tweede plaats geven we, om enkele termen uit de elektronentheorie van de geleiding te introduceren, in het daarop volgende hoofdstuk een zeer beknopte samenvatting van deze theorie, waarbij we ons beperken tot het vrije-elektronenmodel.

Skindikte, brekingsindex en oppervlakimpedantie

Er zijn een aantal „meettechnische” begrippen in omloop die dienen om een metaaloppervlak in relatie tot opvallende elektromagnetische golven te karakteriseren. In de optiek is het gebruikelijk te werken met de *optische constanten* van het materiaal: de brekingsindex n en de absorptie-index k . Deze kunnen samen genomen worden in een *complexe brekingsindex* N . Voor lagere frequenties, met name in het microgolvengebied en bij de discussies van het anomale skineffect, is in gebruik gekomen de *complexe skindikte* δ . Bij nog lagere frequenties werkt men liever met de *oppervlakimpedantie* Z .

De definities van deze grootheden en de samenhang ertussen volgen het gemakkelijkst als men een vlakke golf loodrecht op het oppervlak laat vallen en veronderstelt dat ook in de materie de elektromagnetische velden en stromen exponentiële functies van plaats en tijd zijn.

In de optiek schrijft men dan:

$$E = E_0 \exp(-2\pi k z / \lambda) \exp j\omega(t - nz/c) = E_0 \exp j\omega(t - Nz/c), \quad \dots \dots \dots (5)$$

$$N = n - jk. \quad \dots \dots \dots (6)$$

De snelheid van de elektromagnetische golven in het materiaal is c/n , de amplitude neemt over een afstand λ met een factor $\exp(-2\pi k)$ af. Hierbij is $c = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$ de snelheid, λ de golflengte in vacuüm, $c = \omega \lambda / 2\pi$.

De complexe skindikte

$$\delta = \delta' + j\delta'' \quad \dots \dots \dots (7)$$

is nu zo gedefinieerd dat de velden in de materie zich gedragen als:

$$E = E_0 \exp j(\omega t - z/\delta). \quad \dots \dots \dots (8)$$

Uit een vergelijking van de uitdrukkingen (5) en (8) volgt:

$$1/\delta = \omega N / c. \quad \dots \dots \dots (9)$$

Tot het begrip „oppervlakimpedantie” komt men als volgt. In een metaalachtig materiaal kunnen „gemakkelijk” stromen aanwezig zijn, maar „moeilijk” elektrische velden. Aan het oppervlak van een metaal zijn de elektrische velden zwak, maar de magneetvelden kunnen sterk zijn. De magneetvelden induceren stromen in het metaal en deze brengen (ten gevolge van het niet oneindig zijn van het geleidingsvermogen) zwakke elektrische velden met zich mee en dus absorptie. Voor de geïnduceerde stroom geldt (als we veronderstellen dat de stromen en velden naar nul gaan als z naar oneindig gaat):

$$\int J dz = H_0. \quad \dots \dots \dots (10)$$

(H_0 = magneetveld aan het oppervlak). Dit vindt men door de stelling van Stokes toe te passen op (I,1) langs een contour die eerst evenwijdig met $\mathbf{H}$ aan het oppervlak loopt en dan diep het metaal insteekt tot waar de velden 0 zijn. Hierbij is de verschuivingsstroom verwaarloosd. De oppervlakimpedantie $Z = R + jX$ is nu per definitie:

$$Z = E_0 / \int J dz = E_0 / H_0. \quad \dots \dots \dots (11)$$

E_0 is de component van het elektrische veld langs het oppervlak loodrecht op $\mathbf{H}_0$. Als de verschuivingsstroom niet verwaarloosbaar is, is de tweede uitdrukking de algemene definitie van de oppervlakimpedantie.

Uit (2), (8) en (11) volgt nu onmiddellijk:

$$Z = \omega\mu\delta. \quad (12)$$

Aangezien in de definitie (11) van de oppervlakimpedantie alleen de velden aan het oppervlak voorkomen is deze ook bruikbaar in het geval dat de velden in de materie niet exponentieel verlopen. Men heeft de vrijheid om ook in dat geval een formele complexe brekingsindex en een formele complexe skindikte in te voeren met behulp van de vergelijkingen (12) en (9).

Experimenteel van belang zijn de *absorptiefactor* α en de *reflexiefactor* ϱ ; ϱ is de gereflecteerde fractie en α de in het materiaal geabsorbeerde fractie van het opvallende vermogen. We stellen ons voor dat het materiaal zich in de richting van de $+z$ -as oneindig ver uitstrekt, zodat complicaties door reflexie aan de achterkant niet optreden. Dan is $\alpha + \varrho = 1$. De in de inleiding reeds gebruikte term „transmissie” voor het verschijnsel dat optreedt boven de plasmafrequentie betekent dan dat de straling ver, d.i. vele golflengtes, in het materiaal doordringt. Een stuk van eindige dikte van hetzelfde materiaal zou bij dezelfde frequentie een aanzienlijk deel van de straling doorlaten. Men onderscheide de absorptiefactor wel van de absorptiecoëfficiënt, d.i. de per meter gedissipeerde fractie van het vermogen in een lopende golf; deze is gelijk aan $2\omega k/c$.

α en ϱ , uitgedrukt in δ , Z of N , vinden we als volgt. De eenvoudige vlakke golven van het vorige hoofdstuk kunnen buiten het metaal ($z < 0$) ontbonden worden in een opvallende en een teruggekaatste golf:

$$\begin{aligned} E &= Z_0 P \exp j\omega(t - z/c) + Z_0 Q \exp j\omega(t + z/c), \\ H &= P \exp j\omega(t - z/c) - Q \exp j\omega(t + z/c), \end{aligned}$$

waarin $Z_0 = \sqrt{(\mu_0/\epsilon_0)} = 377 \Omega$, de impedantie van het vacuüm. Op het oppervlak $z = 0$ zijn de velden:

$$\begin{aligned} E_0 &= Z_0(P + Q) \exp j\omega t, \\ H_0 &= (P - Q) \exp j\omega t. \end{aligned}$$

E en H zijn continu aan het oppervlak. Met (11) volgt:

$$Z = Z_0 \frac{P + Q}{P - Q},$$

dus

$$\frac{Q}{P} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0},$$

zodat

$$\varrho = \left| \frac{Q}{P} \right|^2 = \left| \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \right|^2 = \frac{(R - Z_0)^2 + X^2}{(R + Z_0)^2 + X^2}$$

en

$$\alpha = \frac{4RZ_0}{(R + Z_0)^2 + X^2}. \quad (13)$$

Bij metalen geldt in een zeer uitgebreid gebied van waarden van ω en σ dat $Z_0 \gg |Z|$, ofwel $c/\omega \gg |\delta|\mu_r$, met andere woorden (voor zover μ_r niet te sterk van 1 verschilt): de golflengte in vacuüm is veel groter dan de absolute waarde van de complexe skindikte. Tot hoever dit gebied zich uitstrekt, zullen we later zien. In dit gebied geldt:

$$\alpha \approx 4R/Z_0 = 4(\omega/c)\mu_r\delta'. \quad (14)$$

In het optische gebied kan men μ_r meestal gelijk aan 1 stellen.

Uit een vergelijking van (3) met (8) volgt dat in het geval van de *klassieke indringing* (A in fig. 2) voor de complexe skindikte geldt:

$$(1 + j)/\delta_k = j/\delta,$$

dus

$$\delta = \frac{1}{2}(1 + j)\delta_k, \quad \delta' = \delta'' = \frac{1}{2}\delta_k; \quad (15)$$

hierin is δ_k de door (4) gedefinieerde reële grootte.

Het vrije-elektronenmodel

Als achtergrond voor de verdere beschouwingen geven we thans een zeer beknopte samenvatting van de elektronentheorie, en wel in zijn eenvoudigste vorm: het vrije-elektronenmodel.

Reeds aan het begin van deze eeuw heeft Drude^[2] een theorie opgesteld waarbij de relaxatie-effecten in rekening gebracht worden. Zijn model is als volgt. Voor de gemiddelde snelheid v_e van de elektronen geldt:

$$m\dot{v}_e = eE - mv_e/\tau; \quad (16)$$

m is de massa en e is de lading van een elektron. De term in het linkerlid is de traagheidsterm, de eerste term rechts de uitwendige kracht, en de tweede rechts is een wrijvingsterm, gekarakteriseerd door een relaxatietijd τ . Dit is de karakteristieke insteltijd voor een statisch evenwicht, dus voor een stationaire stroom, na een verandering van het uitwendige veld. In de eenvoudigste vorm van elektronentheorie is τ van de orde van grootte van de gemiddelde tijd tussen twee botsingen van een elektron met het rooster. Is n_e de concentratie van de elektronen, dan is $J = n_e e v_e$, waaruit met (16) volgt:

$$J = (n_e e^2/m)E - J/\tau. \quad (17)$$

Voor stationaire toestanden ($\omega = 0$) is het eerste lid 0, en we vinden:

$$J = \sigma E,$$

met

$$\sigma = n_e e^2 \tau / m. \quad (18)$$

Voor periodieke velden en stromen volgt uit (17) en (18):

$$J = \frac{\sigma E}{1 + j\omega\tau}. \quad (19)$$

[2] P. Drude, Ann. Physik **14**, 677 en 936, 1904.

Met dit eenvoudige model was Drude in staat een theoretisch verband te leggen tussen de elektrische eigenschappen van metalen bij lage frequenties en hun optische eigenschappen. Dit komt in een volgend hoofdstuk ter sprake.

Het resultaat van een quantummechanische behandeling van het vrije-elektronenprobleem is dat het model van Drude formeel hanteerbaar blijft onder de restrictie dat we aan de elektronen een snelheid v , de Fermi-snelheid, moeten toekennen. Men onderscheide de Fermi-snelheid v wel van de driftsnelheid v_e . De Fermi-snelheid is een voor alle geleidingselektronen vrijwel even grote, willekeurig georiënteerde snelheid, die voor een gewoon metaal van de orde van 10^6 m/s is, terwijl de driftsnelheid in een gewoon metaal bij b.v. een stroomdichtheid van 1 A/mm^2 van de orde van 10^{-4} m/s is. Het feit dat de elektronen zich door een rooster van positieve ionen bewegen, kan in rekening gebracht worden door ze een *effectieve massa* m in plaats van de vrije-elektronenmassa toe te kennen. De Fermi-snelheid is gegeven door n_e en m :

$$(mv/h)^3 = 3\pi^2 n_e. \quad (20)$$

De elektronen worden enerzijds verstrooid door fononen (quanta van de thermische roostertrillingen), waardoor de relaxatietijd τ afhankelijk is van de temperatuur, en anderzijds door roosterfouten, zodat τ ook afhangt van de zuiverheid van het metaal. Via de Fermi-snelheid is τ direct gekoppeld aan een *vrije weglengte* l :

$$l = v\tau. \quad (21)$$

In de theorie van Drude komen n_e , m en e alleen in de combinatie ne^2/m voor. We voeren nu in de *plasma*-(cirkel-)frequentie ω_p en een bijbehorende lengte λ_p volgens:

$$\omega_p^2 = ne^2/\epsilon m, \quad (22)$$

$$\lambda_p^2 = m/\mu ne^2, \quad (23)$$

$$\omega_p \lambda_p = 1/\sqrt{\epsilon \mu}. \quad (24)$$

$2\pi\lambda_p$ is de met ω_p corresponderende golflengte voor elektromagnetische golven in een dielektrisch materiaal, gekarakteriseerd door ϵ en μ (het „grondrooster”, zie I, Inleiding). De grootheden ω_p en λ_p zullen we voorlopig alleen als maat voor de elektronenconcentratie hanteren. Later zullen ze een meer directe fysische betekenis als karakteristieke frequentie en als karakteristieke lengte krijgen.

Het metaal wordt nu gekarakteriseerd door ω_p of λ_p (elektronenconcentratie) en τ (zuiverheid en temperatuur). Dan is dus b.v.:

$$\sigma = \epsilon \omega_p^2 \tau = \tau/\mu \lambda_p^2, \quad (25)$$

$$\delta_k^2 = 2\lambda_p^2/\omega \tau, \quad (26)$$

en de complexe skindikte wordt in het *klassieke gebied* (A in fig. 2) gegeven door

$$\delta^2 = j/\omega \mu \sigma = j\lambda_p^2/\omega \tau. \quad (27)$$

De volgende beschouwingen zijn afgestemd op de metaalachtige geleiders. Sluiten we de halfmetalen en de halfgeleiders uit, dan kunnen we de parameters n_e , v , ω_p en λ_p (en eventueel m voor zover de effectieve massa afwijkt van de elektronenmassa) beschouwen als „ongevoelige” materiaalparameters. Deze liggen vrijwel vast voor een gegeven metaal, en verschillen van metaal tot metaal niet meer dan een factor van de orde 1. Bij toepassing van de vrije-elektronentheorie zijn v , ω_p en λ_p geheel door n_e bepaald. Daartegenover staan de „gevoelige” parameters: σ , l , τ . Deze kunnen vele factoren 10 variëren bij variatie van temperatuur of zuiverheid. Zij zijn met elkaar evenredig, hun verhouding wordt door de ongevoelige parameters bepaald.

Om een indruk te geven wat redelijke waarden zijn voor de ingevoerde grootheden, zijn in *tabel I* de ongevoelige parameters berekend voor een „standaardmetaal”, dat bepaald is door een redelijke keuze voor n_e , m , ϵ_r en μ_r . Tevens zijn τ en l voor dit metaal berekend bij drie representatieve waarden van σ , beantwoordend aan zeer zuiver koper bij lage temperatuur, koper bij kamertemperatuur en constantaan.

Niet-momentane en niet-lokale relaties tussen J en E

We hebben nu een basis om de in de inleiding genoemde effecten nader te bestuderen. Daarvan zijn de relaxatie-effecten en de transmissie reeds begrepen in

Tabel I. Gekozen en hieruit berekende parameters voor een standaardmetaal. De gevoelige parameters l en τ zijn berekend voor drie representatieve waarden van σ . Voor de berekening zijn gebruikt de constanten $e = 1,60 \times 10^{-19} \text{ C}$, $h = 1,05 \times 10^{-34} \text{ Js}$, $\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ F/m}$, $\mu_0 = 1,26 \times 10^{-6} \text{ H/m}$.

Gekozen parameters	$n_e = 6,0 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ $m = 9,1 \times 10^{-31} \text{ kg}$ $\epsilon_r = 1$ $\mu_r = 1$	
Berekende ongevoelige parameters	$v = 1,40 \times 10^6 \text{ m/s}$ $\omega_p = 1,38 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ $\lambda_p = 2,18 \times 10^{-8} \text{ m}$ $\tau/\sigma = 6,0 \times 10^{22} \text{ } \Omega\text{ms}$ $l/\sigma = 8,3 \times 10^{-16} \text{ } \Omega\text{m}^2$	
Gevoelige parameters	$\sigma \approx 10^{12} (\Omega\text{m})^{-1}$ (zuiver koper, 4 °K)	$\tau \approx 5 \times 10^{-10} \text{ s}$ $l \approx 10^{-3} \text{ m}$
	$\sigma = 6 \times 10^7 (\Omega\text{m})^{-1}$ (koper, 300 °K)	$\tau = 4 \times 10^{-14} \text{ s}$ $l = 5 \times 10^{-8} \text{ m}$
	$\sigma = 2 \times 10^6 (\Omega\text{m})^{-1}$ (constantaan)	$\tau = 1 \times 10^{-15} \text{ s}$ $l = 2 \times 10^{-9} \text{ m}$

de theorie van Drude. Deze zullen we in het volgende hoofdstuk behandelen. Pas veel later (London 1940^[3], Pippard 1947^[4]) begint het onderzoek van de verschijnselen die gepaard gaan met het anomale skineffect en de anomale reflexie.

Tussen de relaxatie-effecten en het anomale skineffect bestaat in zekere zin een symmetrie. Dit ziet men als volgt. Bij de beschrijving van het skineffect moet men onder gegeven randvoorwaarden de Maxwell-vergelijkingen oplossen; een essentieel gegeven daarvoor is het verband tussen J en E in de materie. In de theorie van het klassieke skineffect stelt men in het metaal eenvoudig $J = \sigma E$. Dit is een *lokale, momentane* relatie: het veld op een gegeven plaats en een gegeven tijdstip bepaalt de stroomdichtheid op dezelfde plaats en hetzelfde tijdstip. In de theorie van Drude wordt de stroom op een gegeven plaats ten tijde t_0 bepaald door de waarden van het veld op dezelfde plaats, maar op tijden van de orde van τ of minder vóór t_0 ; er is dus een *lokale, niet momentane* relatie. In de theorie van het anomale skineffect heeft men te maken met een *niet lokale* relatie: doordat het veld sterk varieert over afstanden van de orde van een vrije weglengte, wordt de snelheid van een elektron op een gegeven plaats bepaald door velden in een omgeving van de orde van grootte l . De bedoelde symmetrie tussen de relaxatie-effecten en het anomale skineffect is dus die tussen „niet-momentaan” en „niet-lokaal”. Dat de relaxatie-effecten in de theorie van Drude zoveel eenvoudiger zijn dan het anomale skineffect, is daaraan te danken dat het mogelijk en zinvol is ons telkens tot één frequentie te beperken; verder is in de niet-lokale theorie de aanwezigheid van het oppervlak een complicerende factor. Door de beperking tot één frequentie verdwijnt de tijd uit de vergelijkingen en bestaat in de theorie van Drude tussen J en E de eenvoudige lokale relatie (19); de niet-momentane herkomst van (19) uit zich nog in de imaginaire term in de noemer.

We willen er nog attent op maken dat het expliciet optreden van de vrije weglengte l in de anomale (niet-lokale) theorie — naast de parameter τ die al in de theorie van Drude optreedt — met zich meebrengt dat de Fermi-snelheid v , een typisch quantummechanische grootte, een rol gaat spelen.

Relaxatie-effecten en transmissie

We zullen nu nagaan welke modificaties in de theorie van het skineffect optreden als we de theorie van Drude toepassen. Hierin treedt dus de relaxatietijd τ op als een nieuwe parameter naast σ , het geleidingsvermogen bij frequentie 0; τ en σ zijn verbonden door de relatie (18). We houden ons steeds aan de eenvoudige con-

figuratie van fig. 1. In verg. (1) treden nu twee modificaties op. In de eerste plaats houden we rekening met de verschuivingsstroom; in de tweede plaats substitueren we voor J niet σE maar $\sigma E/(1 + j\omega\tau)$ volgens (19). Hebben de velden en stromen het exponentiële verloop (8), dan gaan de Maxwell-vergelijkingen over in:

$$jH/\delta = j\omega\epsilon E + \frac{\sigma E}{1 + j\omega\tau}, \quad \dots \dots (28)$$

$$-jE/\delta = -j\omega\mu H. \quad \dots \dots \dots (29)$$

Hieruit volgt voor δ :

$$1/\delta^2 = \epsilon\mu\omega^2 - \frac{j\omega\mu\sigma}{1 + j\omega\tau}. \quad \dots \dots \dots (30)$$

Met (9) is hiermee een verband gelegd tussen de optische constanten enerzijds en σ en τ anderzijds. Voor de verdere discussie schrijven we (30) met behulp van (22) tot (25) in de volgende vorm:

$$(\lambda_p/\delta)^2 = (\omega/\omega_p)^2 - 1 + \frac{1}{1 + j\omega\tau}. \quad \dots (31)$$

Hiermee is het gedrag van δ als functie van ω en τ gegeven. Het ω - τ -vlak, waarin ω horizontaal, τ verticaal, beide logaritmisch zijn uitgezet (fig. 3), kan nu in drie gebieden verdeeld worden; in elk van de gebieden wordt (ver van de grenzen) het gedrag van δ bijzonder eenvoudig.

A) $\omega\tau$ is zo klein dat men de tweede en de derde term in het rechterlid van (31) kan combineren tot

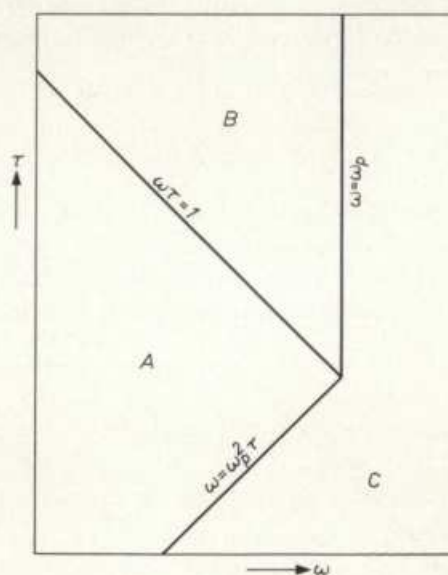


Fig. 3. Het ω - τ -diagram, waarin τ verticaal en ω horizontaal (beide op logaritmische schaal) zijn uitgezet. Bij toepassing van de theorie van Drude kan men hierin drie gebieden A, B en C onderscheiden waarin het gedrag van de elektromagnetische golven zeer eenvoudig is zolang men ver van de grenzen is. A is het gebied van het klassieke skineffect (zie ook fig. 2), B het relaxatiegebied (idem), C het transmissiegebied. In A, B en C gelden voor δ resp. de benaderingsformules (32), (34) met (35) en (36). De vergelijkingen voor de grenzen zijn in de figuur aangegeven.

[3] H. London, Proc. Roy. Soc. A **176**, 522, 1940.

[4] A. B. Pippard, Proc. Roy. Soc. A **191**, 385 en 399, 1947.

$-j\omega\tau$, terwijl de eerste term veel kleiner is dan deze nieuwe term. Daarvoor moet gelden $(\omega/\omega_p)^2 \ll \omega\tau \ll 1$, dus $\omega\tau \ll 1$ en $\omega \ll \omega_p^2\tau$. Dan geldt bij benadering $(\lambda_p/\delta)^2 = -j\omega\tau$, dus:

$$\delta^2 = j\lambda_p^2/\omega\tau. \quad (32)$$

Dit is de formule voor het klassieke skineffect (27). Het gebied A is dus het geldigheidsgebied voor het *klassieke skineffect*. Uit (9), (6) en (25) volgt dat (27) gelijkwaardig is met:

$$n = k = \sqrt{\sigma/2\varepsilon\omega}. \quad (33)$$

Dit is de *relatie van Hagen en Rubens* [5], het klassieke skineffect in optische taal.

B) De middelste term is alleen van betekenis, doordat $\omega\tau \gg 1$ en $\omega \ll \omega_p$. Dan is $\delta^2 = -\lambda_p^2$, dus $\delta' = 0$, $\delta'' = \lambda_p$. Het elektromagnetische veld is nu een trilling zonder golfkarakter, die uitsterft langs de z -as als $\exp(-z/\lambda_p)$. De indringdiepte is onafhankelijk van frequentie en geleidingsvermogen (relaxatietijd). De elektronen maken tussen twee botsingen vele periodes van het wisselveld mee ($\tau \gg 1/\omega$) zodat het elektromagnetische veld in eerste instantie een laag van geheel vrije elektronen ziet die wel afschermen maar niet absorberen omdat de gemiddelde snelheid van de elektronen, en dus de stroom, steeds 90° uit fase is met het veld. Met $\omega\tau \gg 1$ volgt dit ook onmiddellijk uit (19). B is het *relaxatiegebied*. De opvallende golf wordt volledig gereflecteerd. De absorptie is echter alleen nul, en de reflexie alleen volledig, in „nulde” benadering. Een eerste benadering vinden we door in (31) termen van de eerste orde in $1/\omega\tau$ mee te nemen. De berekening levert voor $\omega \ll \omega_p$:

$$\delta'' = \lambda_p, \quad (34)$$

$$\delta' = \lambda_p/2\omega\tau. \quad (35)$$

C) Alleen de eerste term is van betekenis. Dit is het

geval als $\omega \gg \omega_p$, en ook als $\omega \gg \omega_p^2\tau$. Dan is $1/\delta^2 = \varepsilon\mu\omega^2$, dus:

$$\delta' = 1/\omega\sqrt{\varepsilon\mu}, \quad \delta'' = 0. \quad (36)$$

De oplossingen (8) stellen nu ongedempte lopende golven voor met een fazesnelheid $1/\sqrt{\varepsilon\mu}$ en een golfengte $2\pi\delta'$. De velden blijven dus in principe niet meer beperkt tot een dunne laag aan het oppervlak maar er treedt *transmissie* op. We komen dus eigenlijk buiten het gebied van ons onderwerp: hier is geen sprake meer van een skineffect. De parameters die het gedrag van de elektronen beschrijven zijn verdwenen: de invloed van de elektronen op het elektromagnetische veld is nihil (natuurlijk weer alleen in nulde benadering).

In een vorig hoofdstuk hebben we een benaderende formule (verg. 14) gegeven voor de samenhang tussen complexe skindikte en absorptiefactor; het geldigheidsgebied hiervoor kunnen we nu aangeven. De voorwaarde voor de geldigheid van (14) was $c/\omega \gg |\delta|$, ofwel $\omega^2/c^2 \ll 1/|\delta|^2$ (als we $\mu_r = 1$ stellen). Dit betekent dat de eerste term in het rechterlid van (30), dus de eerste term in het rechterlid van (31), klein moet zijn ten opzichte van de andere termen; met andere woorden, dat we vanuit A of B komend de grens met C niet te dicht mogen naderen.

De samenhang tussen deze grensgevallen en de overgang van het ene golfpatroon in het andere verkrijgt men door enerzijds het traject te construeren dat δ doorloopt in het complexe δ -vlak als ω loopt van 0 naar ∞ (fig. 4), en anderzijds te bedenken welk golfpatroon bij elk punt in het δ -vlak behoort (fig. 5). Fig. 4a geeft het δ -traject in de limieten A, B en C; ω neemt toe in de richting van de pijl. Gaat men kwalitatief na hoe δ loopt volgens de volledige formule (31), dan vindt men fig. 4b voor $\omega_p\tau \gg 1$, fig. 4c voor $\omega_p\tau = 2$ en fig. 4d voor $\omega_p\tau \ll 1$. Voor $\omega_p\tau \gg 1$ beschrijft δ tussen B en

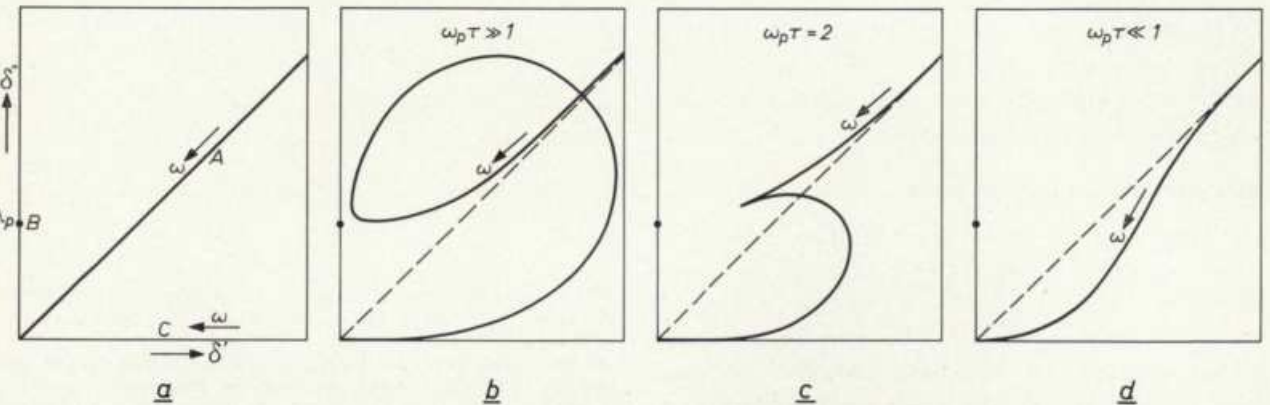


Fig. 4. Het traject dat δ volgens de theorie van Drude in het complexe vlak doorloopt als ω loopt van $0 \rightarrow \infty$, a) in de drie grensgevallen A, B en C van fig. 3, b) voor $\omega_p\tau \gg 1$, c) voor $\omega_p\tau = 2$, d) voor $\omega_p\tau \ll 1$. De pijl geeft de richting waarin ω toeneemt.

C een lus; deze verdwijnt voor kleine $\omega_p\tau$; het tussen-geval met een keerpunt (waar men verder geen uitgesproken fysische betekenis achter moet zoeken) treedt op voor $\omega_p\tau = 2$. Voor grote $\omega_p\tau$ wordt de lus in een kort ω -interval doorlopen.

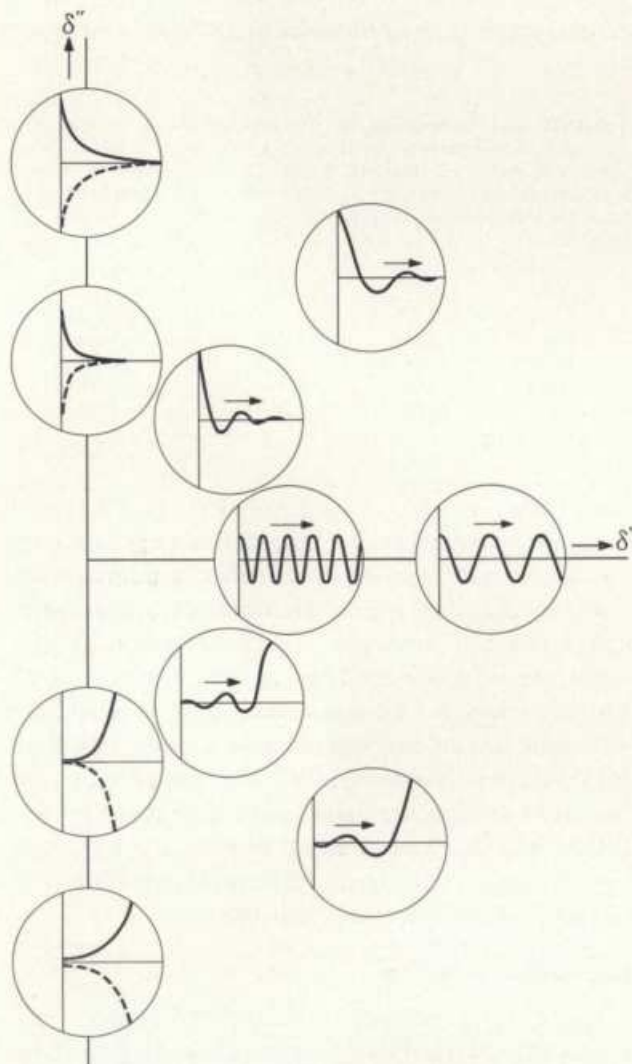


Fig. 5. Het golfkarakter dat bij verschillende gebieden in het complexe δ -vlak hoort. Voor naar rechts (d.i. in de richting van de positieve z -as) lopende golven ligt δ in het eerste of het vierde kwadrant ($\delta' > 0$). In het eerste kwadrant heeft men gedempte golven, in het vierde kwadrant aanzwellende golven, op de δ' -as ($\delta'' = 0$) ongedempte golven en op de δ'' -as ($\delta' = 0$) trillingen zonder golfkarakter, langs de z -as uitstervend ($\delta'' > 0$) of explosierend ($\delta'' < 0$).

In fig. 5 zijn bij enkele punten in het δ -vlak de corresponderende golfpatronen geschetst, zoals die volgen uit de plaats- en tijdafhankelijkheid van het veld volgens verg. (8):

$$\exp j(\omega t - z/\delta) = \exp(-\delta'' z/|\delta|^2) \exp j(\omega t - \delta' z/|\delta|^2).$$

We beperken ons tot naar rechts lopende (of niet lopende) golven: $\delta' \geq 0$, dus tot het 1e en 4e kwadrant. In het 1e kwadrant heeft men gedempte golven ($\delta'' > 0$), in het 4e aanzwellende golven ($\delta'' < 0$), langs de reële as ongedempte golven, en langs de imaginaire as trillingen zonder golfkarakter, exponentieel gedempt ($\delta'' > 0$) of „explosief” ($\delta'' < 0$).

Bij deze figuren merken we nog twee dingen op. a) Volgens fig. 4 bevindt δ zich steeds in het eerste kwadrant; we hebben dus steeds gedempte lopende golven: in de materie wordt altijd energie gedissipeerd. In de limietgevallen B en C is de dissipatie 0: in C zijn de golven juist ongedempt, in B zijn er geen lopende golven dus geen energietransport. b) Bij de „plasma-overgang” B $\rightarrow$ C voor grote $\omega_p\tau$ loopt δ eerst langs de imaginaire as weg en komt later langs de reële as terug. Het veld dringt dus eerst steeds dieper door, terwijl de velden in verschillende punten onderling vrijwel in fase zijn; daarna ontstaan er fazeverschillen over grote afstanden, dus lange lopende golven, die steeds korter worden en die weinig gedempt zijn.

In hoeverre beschrijft de theorie van Drude de experimentele feiten? In grote lijnen kunnen we hiervan het volgende zeggen.

Voor ons standaardmetaal ligt de „plasmagrens” $\omega = \omega_p$ bij een golflengte van $2\pi\lambda_p = 2\pi \times 2,18 \times 10^{-8} \text{ m} = 137 \text{ nm}$, dus ver in het ultraviolet (zie fig. 6). De waarde van τ in het punt waar de drie gebieden elkaar raken is $1/\omega_p = 0,725 \times 10^{-16} \text{ s}$; dit is een factor 500 lager dan de τ die bij koper bij kamertemperatuur

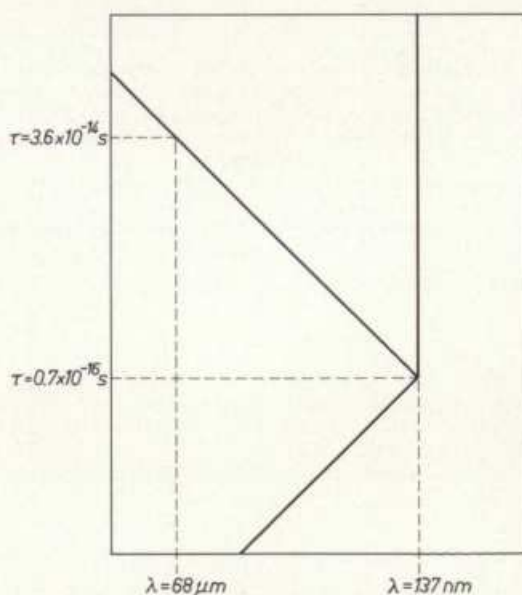


Fig. 6. Enkele karakteristieke waarden van τ en λ in het ω - τ diagram (zie fig. 3) voor het standaardmetaal. Voor het ontmoetingspunt van de drie gebieden ($\omega = \omega_p$, $\tau = 1/\omega_p$) is $\tau = 0,7 \times 10^{-16} \text{ s}$, $\lambda = 137 \text{ nm}$. Bij $\tau = 3,6 \times 10^{-14} \text{ s}$ (corresponderend met de waarde van σ voor koper bij 300 °K) wordt de grenslijn $\omega\tau = 1$ bereikt bij een golflengte $\lambda = 68 \mu\text{m}$.

[5] E. Hagen en H. Rubens, Ann. Physik **11**, 873, 1903.

hoort: $\tau_k = 3,6 \times 10^{-14}$ s. De golflengte waarbij koper (kamertemperatuur) de grens $\omega\tau = 1$ passeert is $2\pi c\tau_k = 68 \mu\text{m}$.

Beperken we ons nu eerst tot het „optische gebied” (het zichtbare gebied en het nabije infrarood en ultraviolet), dan leren deze ruwe schattingen dat alleen de slecht geleidende metalen zich in gebied A zullen bevinden; voor de goed geleidende metalen ligt het optische gebied in B.

Constantaan is een voorbeeld van een *slecht geleidend* metaal, waar de relatie van Hagen en Rubens, die in A hoort te gelden, nog goed opgaat. Voor de *goed geleidende* metalen (Cu, Ag, Au, Al) geven de relaties (34) en (35) voor gebied B *kwalitatief* een goede beschrijving van het experimentele gedrag van de optische constanten in hun afhankelijkheid van ω , voorzover ω niet te groot wordt [6]. Om numerieke overeenstemming te krijgen, moet men echter voor τ een waarde invullen die aanzienlijk kleiner is dan de waarde die correspondeert met σ , het geleidingsvermogen bij frequentie 0 (zie tabel II). De optische meetresultaten zouden dus in overeenstemming zijn met de theorie als het gemeten metaal slechter geleidend zou zijn dan het in werkelijkheid is. Een mogelijke verklaring hiervoor is dat in de dunne laag onder het oppervlak waarin de optische verschijnselen zich afspelen, de concentratie van verontreinigingen groter is dan in het metaal als geheel. Dat de resultaten van verschillende onderzoekers nogal uiteen liepen en dat de resultaten sterk afhankelijk bleken te zijn van de wijze waarop het oppervlak geprepareerd was, wordt hier ook mee verklaard [6].

Tabel II. Vergelijking van optische en laagfrequent-elektrische eigenschappen van koper, zilver en goud volgens Försterling en Fredericksz [7]. $\tau(\text{opt})$ is de relaxatietijd die men nodig heeft om met de theorie van Drude de optische meetresultaten te beschrijven, $\tau(\sigma)$ de relaxatietijd die volgt uit σ . De genoemde auteurs geven σ -waarden die wij omgerekend hebben op τ met (25). De daarbij gebruikte factor $\mu\lambda_p^2$ is afgeleid met het vrije-elektronen-model uit het soortelijk gewicht en het atoomgewicht, met de veronderstelling dat het aantal elektronen per atoom 1 is. τ is uitgedrukt in 10^{-14} s en $\mu\lambda_p^2$ in 10^{-22} Hm.

	Cu	Ag	Au
$\tau(\text{opt})$	0,46	0,95	1,7
$\tau(\sigma)$	2,5	3,9	2,6
$\mu\lambda_p^2$	4,2	6,1	6,1

De waarden van ω waarbij de kwalitatieve overeenstemming ophoudt zijn in het algemeen aanzienlijk kleiner dan de verwachte plasmafrequentie. Bij deze frequenties treden absorptiebanden op die toegeschreven worden aan quantumsprongen van elektronen, geïnduceerd door de straling. Deze zijn niet begrepen in de theorie van Drude.

De plasmagrens wordt bij metalen als goud, koper, zilver dus verduisterd door de bovengenoemde absorptiebanden. Dit geldt niet voor de alkalimetalen. In 1933 ontdekte Wood [8] dat deze transparant worden in het ultraviolet. Zener [9] heeft de grensgolflengte waarbij dit gebeurt met succes geïnterpreteerd als de plasmagrens. In tabel III worden de theoretische en de experimentele grensgolflengten met elkaar vergeleken.

Tabel III. De plasmagrens, d.i. de grensgolflengte waarbij een metaal van reflecterend transparant wordt, experimenteel (λ_{exp}) volgens Wood [8] en theoretisch ($2\pi\lambda_p$) volgens Zener [9]. n_{eff}/n_a is het aantal elektronen per atoom waarbij de theoretische plasmagrens met de experimentele zou samenvallen.

	λ_{exp}	$2\pi\lambda_p$	n_{eff}/n_a
Li	205 nm	155 nm	0,54
Na	210	210	1,00
K	315	290	0,85
Rb	360	320	0,79
Cs	440	360	0,67

In het laagfrequente en radiofrequente gebied is in het algemeen de theorie van het klassieke skineffect een goede beschrijving van de verschijnselen. Als nevenresultaat bij zijn metingen van de hoogfrequentweerstand van supergeleidend tin in 1940 [3] constateerde London echter dat bij lage temperatuur de schijnbare weerstand van het normaal geleidende metaal bij microgolffrequenties groter was dan voor gelijkstroom. Hij deed toen de suggestie dat dit een gevolg is van het feit dat de skindikte kleiner wordt dan de vrije weglengte van de elektronen en legde daarmee de grondslag voor de theorie van het anormale skineffect.

Het anormale skineffect

Bij de berekening van het klassieke skineffect is impliciet verondersteld dat we in elk punt van het metaal de stroomdichtheid $\mathbf{J}$ en de veldsterkte $\mathbf{E}$ kunnen aan-geven en dat tussen deze grootheden steeds de relatie $\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}$ geldt. Als nu de skindikte — een afstand waarover de velden sterk variëren — kleiner wordt dan de vrije weglengte (zie D in fig. 2), dan wordt de snelheid van het elektron (en dus zijn bijdrage tot de stroomdichtheid) niet alleen bepaald door het veld ter plaatse maar ook door alle velden die het sinds zijn laatste botsing gevoeld heeft.

Een eenvoudig beeld van de situatie — waarmee ook een redelijke schatting van het effect verkregen kan worden — is gegeven door Pippard [4] met zijn „ineffectiveness concept”, de gedachte van de „onwerkzame elektronen”. Een elektron dat zich ongeveer loodrecht op het oppervlak beweegt, zal zich slechts voor een klein gedeelte van zijn looptijd tussen twee bot-

singen in het veld van de skinlaag bevinden. Het heeft dus slechts een geringe wisselwerking met het veld en is dus niet effectief bij de afscherming en de absorptie van de elektromagnetische golven. De afscherming en de absorptie, en derhalve het ontstaan van een skinlaag, zijn voornamelijk te danken aan de weinige elektronen die langs het oppervlak scheren, aangezien zij een groot gedeelte van hun vrije looptijd in de skinlaag doorbrengen. Enerzijds hangt nu de fractie van de elektronen in de skinlaag die effectief zijn, af van de skindikte, anderzijds is de skindikte, op klassieke wijze berekend met een gereduceerd aantal effectieve elektronen, afhankelijk van deze fractie. Is $\delta_{\sim}$ de skindikte, dan is de verhouding van het aantal scherende elektronen (de elektronen waarvan de baan tussen twee botsingen ongeveer geheel in de skinlaag verloopt) tot het totale aantal in de skinlaag ongeveer $\delta_{\sim}/l$. In de skinlaag is er dus een effectief geleidingsvermogen $\sigma_{\text{eff}} = b\sigma\delta_{\sim}/l$, waarin b een getal is ongeveer gelijk aan 1, of wat groter doordat de niet-scherende elektronen ook nog een beetje meedoen. Met dit effectieve geleidingsvermogen berekenen we weer, volgens (4), de skindikte:

$$\delta_{\sim}^2 = 2/\omega\mu\sigma_{\text{eff}} = (2/\omega\mu\sigma)l/b\delta_{\sim} = \delta_k^2/lb\delta_{\sim},$$

dus

$$\delta_{\sim}^3 = (1/b)\delta_k^2l. \quad \dots \quad (37)$$

Deze uitdrukking is illustratief in zoverre dat hij laat zien dat de skindikte (afgezien van een factor $1/b^{1/3}$) het meetkundig gemiddelde is van de klassieke skindikte δ_k met dubbel gewicht en de vrije weglengte l ; maar tevens is de uitdrukking misschien misleidend, omdat hij suggereert dat $\delta_{\sim}$ van de gevoelige parameter l afhangt. Dat dit niet zo is, volgt door voor δ_k^2 de uitdrukking (26) te substitueren; met $l = v\tau$ krijgen we:

$$\delta_{\sim}^3 = (2/b)(v/\omega)\lambda_p^2. \quad \dots \quad (38)$$

Dit resultaat kunnen we eveneens afleiden volgens een gedachtengang waar we ook later nog gebruik van zullen maken. Deze berust op het invoeren van een „effectieve relaxatietijd” τ_{eff} . Dit is de tijd gedurende welke het veld en het elektron *onafgebroken* met elkaar in wisselwerking staan en die bepalend is voor de invloed van het elektron op het veld (afscherming, absorptie). In het klassieke geval blijft het veld gelijk tussen twee botsingen, zodat τ_{eff} gelijk is aan de tijd tussen twee botsingen τ . In het onderhavige geval echter

wordt de periode van onafgebroken wisselwerking gemarkeerd door het binnentreden in of het verlaten van de skinlaag en een botsing met het oppervlak; τ_{eff} is nu dus ongeveer de tijd nodig om de skinlaag te doorlopen. Stellen we $\tau_{\text{eff}} = b\delta_{\sim}/v$ en, in analogie met (26), $\delta_{\sim}^2 = 2\lambda_p^2/\omega\tau_{\text{eff}}$, dan volgt (38) onmiddellijk. De oorzaak van het feit dat $\delta_{\sim}$ onafhankelijk van de gevoelige parameters wordt, zou men dus zo kunnen samenvatten: de dikte van de skinlaag wordt bepaald door de effectieve wisselwerking tussen de elektronen en het veld, en deze wisselwerking wordt weer, als $l \gg \delta_{\sim}$, bepaald door de dikte van de skinlaag; de gevoelige parameters zijn dus geheel geëlimineerd.

Een rigoureuze theorie van het anomale skineffect is gegeven door Reuter en Sondheimer^[10], een iets minder strenge theorie door Chambers en Pippard^[11]. Waar een vergelijking mogelijk is, geven de beide theorieën hetzelfde resultaat. In deze theorieën kan men drie stappen onderscheiden.

1) Het hoofdprobleem is, de stroomdichtheid te vinden die optreedt in een punt in de materie als gevolg van het veld, niet alleen in dat punt zelf, maar ook in een omgeving van de orde van grootte van l . Chambers en Pippard stellen dat een elektron zich de velden „herinnert” die het in het verleden doorlopen heeft, maar dat deze herinnering in de loop van de tijd vervaagt als $\exp(-t/\tau)$. Een berekening langs deze lijn leidt tot de volgende niet-lokale relatie tussen $\mathbf{J}$ en $\mathbf{E}$ (zie fig. 7):

$$\mathbf{J} = \frac{3\sigma}{4\pi l} \int \frac{\mathbf{r}(\mathbf{E}\mathbf{r}) \exp(-r/l)}{r^4} dV. \quad \dots \quad (39)$$

De stroomdichtheid $\mathbf{J}$ is een integraal over de ruimte; $\mathbf{r}$ is de ruimtelijke vector van een volume-element dV waar een veld $\mathbf{E}$ heerst tot het punt waar $\mathbf{J}$ berekend wordt.

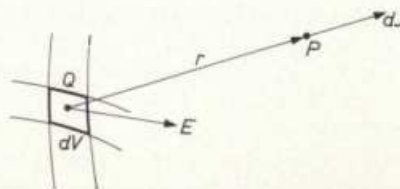


Fig. 7. Ter verduidelijking van verg. (39). De stroomdichtheid wordt in P berekend. Een bijdrage $d\mathbf{J}$ hiertoe wordt geleverd door elektronen uit dV om Q die P bereiken zonder te botsen, en die in Q het veld $\mathbf{E}$ gevoeld hebben; $\mathbf{r}$ is de ruimtelijke vector van Q naar P .

Het resultaat (39) kan men als volgt verkrijgen. Het veld in de directe omgeving van Q (fig. 8a) beïnvloedt de stroom in P doordat er door P een aantal elektronen gaan die, zonder onderweg gebotst te hebben, van Q afkomstig zijn. We merken in de eerste plaats op dat een veld in Q loodrecht op $\mathbf{r}$ geen invloed heeft op

[6] M. Parker Givens, Solid State Physics 6, 313, 1958.

[7] K. Försterling en V. Freedericksz, Ann. Physik 40, 200, 1913.

[8] R. W. Wood, Phys. Rev. 44, 353, 1933.

[9] C. Zener, Nature 132, 968, 1933.

[10] G. E. H. Reuter en E. H. Sondheimer, Proc. Roy. Soc. A 195, 336, 1948.

[11] A. B. Pippard, Advances in Electronics and Electron Physics 6, 1, 1954; Reports on Progress in Physics 23, 194, 218, 1960.

de stroomdichtheid in P : de banen die van Q naar de omgeving van P lopen, worden door een dergelijk veld iets gedraaid; er gaan met veld wel „andere” elektronen door P dan zonder veld, maar het aantal, en ook hun gemiddelde snelheid, is in beide gevallen gelijk (fig. 8b, c). Beschouw nu alle banen in een ruimtehoek $d\Omega$ van elektronen die in een gegeven kort tijdsinterval P passeren (in de richting van Q af); het aantal hiervan is evenredig met $d\Omega$ (fig. 8d). Volgt men deze banen in de richting van het verleden, dus in de richting van Q , dan zal er zo nu en dan één „kegel uit botsen”. De kans dat dit in een stukje dr gebeurt, is voor elke baan even groot en evenredig met dr . Het aantal „ongestoorde”

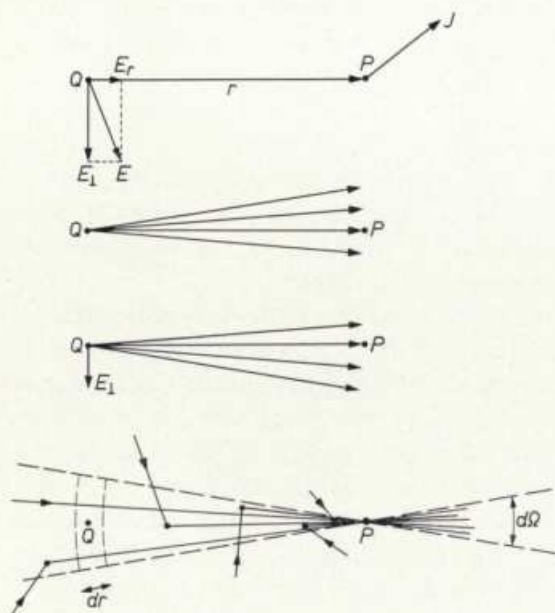


Fig. 8. Ter toelichting bij de berekening van de invloed van het veld in Q op de stroom in P via elektronen die bijdragen tot de stroom in P en rechtstreeks van Q afkomstig zijn.

banen neemt dus in de richting van Q exponentieel af, en het aantal relevante banen in het stukje dr om Q is evenredig met $\exp(-r/l) dr$. Stellen we nu de gemiddelde bijdrage tot de stroomsterkte in P ten gevolge van het veld in Q evenredig met (de parallelle component van) het veld in Q (hierin zijn de botsingen dan verdisconteerd), dan is de gezochte bijdrage dJ in P evenredig met $(\mathbf{r}/r)E_r \exp(-r/l) dr d\Omega$, waarin E_r de veldcomponent in Q in de richting van $\mathbf{r}$ is; de factor $\mathbf{r}/r$ geeft aan dat dJ de richting van $\mathbf{r}$ heeft; $E_\perp$ heeft immers geen effect. Substitutie van $E_r = (\mathbf{E}\mathbf{r})/r$ en $dr d\Omega = dV/r^2$ levert, afgezien van een evenredigheidsfactor, de uitdrukking (39). De integratie is gemakkelijk uit te voeren voor een homogeen veld $\mathbf{E}$; stelt men in dat geval $\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}$, dan volgt daaruit de factor voor de integraal.

In (39) zijn de relaxatie-effecten verwaarloosd. Men kan daar formeel rekening mee houden door $\mathbf{E}$ te vervangen door het „getardecade veld” $[\mathbf{E}]$, d.i. het veld in dV op het tijdstip $t_0 - r/v$ waarop de van dV afkomstige elektronen die op t_0 een bijdrage tot $\mathbf{J}$ leveren, dV passeerden.

2) Vervolgens moet men de invloed van het oppervlak in rekening brengen. Men moet daarbij een veronderstelling maken over de wijze waarop het elektron aan het oppervlak gereflecteerd wordt; de volledige uit-

gewerkte gevallen zijn die van *spiegelende reflexie* en die van *diffuse reflexie*. In het laatste geval wordt de herinnering van de elektronen bij de reflexie volledig uitgewist; de integraal in (39) moet dan alleen genomen worden over het volume van het metaal. Bij spiegelende reflexie rekent men alsof de elektronen het oppervlak ongemerkt kunnen passeren, terwijl men het elektrische veld in het metaal aan het oppervlak spiegelt; vervolgens neemt men de integraal over de gehele ruimte. Het veld in het metaal wordt dus, wat zijn invloed vóór de reflexie op een gereflecteerd elektron betreft, gesimuleerd door het gespiegelde veld.

a 3) Substitutie van de gevonden integraaluitdrukking voor $\mathbf{J}$ in de Maxwell-vergelijkingen (met weglating van de verschuivingsstroom) levert na eliminatie van $\mathbf{H}$ een vergelijking voor $\mathbf{E}$, die — in de gevallen dat alle elektronen hetzij spiegelend hetzij diffuus aan het oppervlak gereflecteerd worden — opgelost is door genoemde auteurs.

c Het resultaat (38), gebaseerd op eenvoudige overwegingen, is in verrassend goede overeenstemming met de rigoureuze theorie. Volgens deze laatste is — als men voor b de juiste waarde invult — verg. (38) een geldige formule voor de complexe skindikte in de anormale limiet zonder relaxatie ($\delta \ll l$, $\delta \ll v/\omega$, D in fig. 2), echter op één detail na. De overwegingen die tot (38) leidden, zijn te grof om het complexe karakter van δ precies te kunnen analyseren; het blijkt dat dit verdisconteerd kan worden door aan (38) een minteken toe te voegen. Met andere woorden, in de anormale limiet (zonder relaxatie) geldt voor de complexe skindikte:

$$\delta^3 = -(2/b) (v/\omega) \lambda_p^2. \quad (40)$$

δ moet in het eerste kwadrant liggen (passieve materie; naar rechts lopende golven); het minteken impliceert dan ^[12] dat

$$\delta'' = \delta'/3. \quad (41)$$

De waarde van b hangt af van de wijze waarop de elektronen aan het oppervlak gereflecteerd worden. Voor diffuse reflexie is $b = 4\pi/\sqrt{3} \approx 7,3$; voor spiegelende reflexie is $b = 3^{5/2} \pi/\sqrt{3} \approx 10,3$. Het karakter van de reflexie heeft hier dus slechts een zeer matige invloed op b.v. de absorptiefactor. Zoals we later zullen zien, is dit niet meer het geval als $v/\omega \ll \delta$ wordt ($\mathbf{E}$ in fig. 2).

De rigoureuze theorie geeft natuurlijk meer informatie. In de eerste plaats wordt de complexe skindikte ook berekend in het overgangsgebied waar l niet veel kleiner of veel groter is dan δ_k . In de tweede plaats wordt de veldverdeling in het metaal volledig berekend. De velden zijn niet meer exponentiële functies van de plaats. Bij een gegeven relatieve afneming aan het oppervlak strekken de velden zich veel dieper in het metaal uit dan met een e -macht overeen zou komen. (Des-

ondanks is de complexe skindikte nog steeds een goed begrip om het oppervlak in relatie tot opvallende golven te karakteriseren, vgl. de opmerking na (12).)

Om in het ω - τ -vlak (vgl. fig. 3) de grens tussen het geldigheidsgebied van de klassieke indringing (A) en dat van de anormale indringing (D) te vinden, stellen we $l = |\delta|$. Berekenen we δ in de klassieke limiet volgens (27), dan volgt hieruit:

$$\omega\tau^3 = (\lambda_p/v)^2. \quad \dots \quad (42)$$

Samen met de in fig. 3 aangegeven grenzen is deze nieuwe grens geschetst in fig. 9.

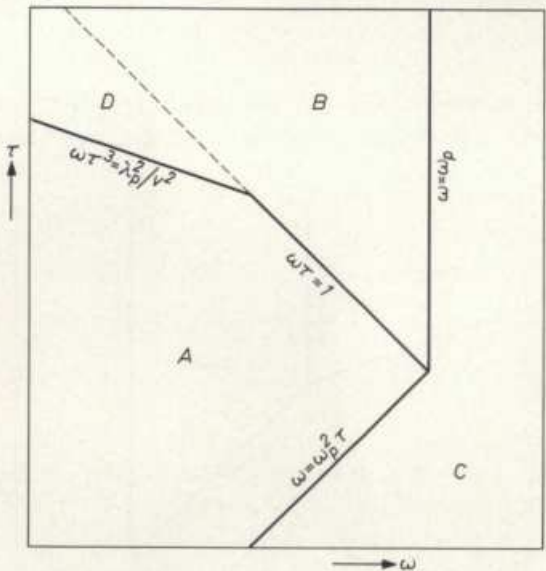


Fig. 9. Het ω - τ -diagram als in fig. 3, met de nieuwe grens tussen het gebied van het klassieke skineffect (A) en dat van het extreem anormale skineffect (D). In D geldt bij benadering verg. (40).

Voor ons standaardmetaal (tabel I) is op de nieuwe grens $\omega\tau^3 = 2,4 \times 10^{-28} \text{ s}^2$, zodat voor de waarden $\tau = 5 \times 10^{-10} \text{ s}$ en $\tau = 4 \times 10^{-14} \text{ s}$ uit tabel I de grens bereikt wordt voor resp. $\omega \approx 2 \text{ s}^{-1}$ en $\omega \approx 4 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$. We moeten dus verwachten dat het „beste” metaal al bij zeer lage frequenties anomaal wordt, en dat bij millimetergolven ($\omega \approx 10^{12} \text{ s}^{-1}$) ook een zeer „matig” metaal als koper bij 300 °K een anomaal gedrag zal vertonen. Voor het punt waar de nieuwe grens in de oude grens $\omega\tau = 1$ loopt, is $\tau = \lambda_p/v$. Voor ons standaardmetaal is dit $1,6 \times 10^{-14} \text{ s}$. Een slecht geleidend metaal als constantaan ($\tau \approx 10^{-15} \text{ s}$) zal bij toenemen-de frequenties dus niet in het anormale gebied D maar in het relaxatiegebied B terecht komen.

Als een fraaie bevestiging van de theorie van het anormale skineffect reproduceren we in fig. 10 enkele experimentele resultaten van Chambers [13]. Afgezien van evenredigheidsconstanten is daarin bij een gegeven frequentie het oppervlakgeleidingsvermogen ($1/R \sim 1/\delta'$) uitgezet tegen de wortel uit het geleidingsvermogen σ . Volgens de klassieke theorie zijn deze grootheden evenredig met elkaar: $1/R = \sqrt{(2\sigma/\mu\omega)}$. De meest markante eigenschap van δ' in de anormale limiet is zijn onafhankelijkheid van de gevoelige parameters, b.v. σ (zie verg. 40 en 41). Deze tendentie wordt in fig. 10 fraai gedemonstreerd.

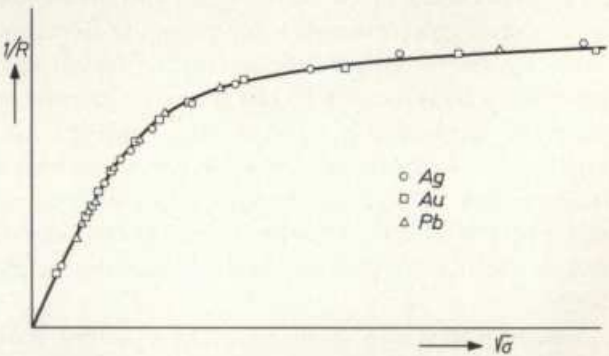


Fig. 10. Het oppervlakgeleidingsvermogen $1/R$ van zilver, goud en lood als functie van $\sqrt{\sigma}$ bij 3600 MHz, volgens Chambers [13]. Verschillende punten zijn verkregen door de temperatuur te variëren. De getrokken kromme volgt uit de theorie van het anormale skineffect met diffuse reflexie van de elektronen aan het oppervlak. Voor elk van de materialen zijn de schalen aangepast, om de punten zo goed mogelijk tot dekking te brengen met de theoretische kromme. Met de theorie voor spiegelende reflexie is de beste dekking die men kan verkrijgen aanmerkelijk slechter. Uit de aanpassing volgt σ/l , een grootheid onafhankelijk van de gevoelige parameters (in onze notatie is $\sigma/l = 1/\mu v \lambda_p^2$). Het beginstuk correspondeert met de klassieke limiet, waarin het verband lineair is, het rechter stuk met de extreem anormale limiet, waarin R onafhankelijk is van σ .

Volgens (40) en (41) wordt bij een gegeven frequentie in de anormale limiet δ' (via v en λ_p) geheel bepaald door n_e . Strikte toepassing van de vrije-elektronentheorie levert in deze limiet:

$$n_e^2 = 3\pi^2 (\hbar/4b\mu e^2 \omega \delta'^2)^3. \quad \dots \quad (43)$$

Op deze wijze heeft Chambers het aantal vrije elektronen per atoom voor verschillende metalen bepaald, zie tabel IV [14].

In het feit dat voor de eenvoudige metalen waarden in de buurt van 1 gevonden worden, kan men enerzijds de bevestiging in

Tabel IV.

Cu	1,0
Ag	0,68
Au	0,60
Sn	1,10
Hg	0,23
Al	0,37

[12] Deze relatie kan men ook direct uit de Kramers-Kronig-relaties afleiden, als men als gegeven veronderstelt dat $\delta \sim \omega^{-1/3}$ (vgl. Pippard [11]).

[13] R. G. Chambers, Proc. Roy. Soc. A 215, 481, 1952.

[14] E. H. Sondheimer, Phil. Mag. Suppl. I, 1, 1952.

grote lijnen zien van de bovengeschetste theorie en anderzijds een aanwijzing dat de oppervlakken waarmee Chambers gewerkt heeft met grote zorg behandeld zijn. Is het oppervlak niet glad en spanningsloos, dan vindt men gemakkelijk enigszins te grote waarden voor δ' , die in hevig versterkte mate ($n_e \sim \delta'^{-9/2}$) te kleine waarden voor n_e opleveren. Bovendien kan men alleen voor de eenvoudigste metalen verwachten dat de vrije-elektronentheorie een redelijke benadering is. Om deze redenen moet men deze resultaten dus meer zien als bevestiging van de theorie dan als nauwkeurige bepaling van n .

De anormale reflexie

Bij het beschouwen van fig. 9 dringt zich onmiddellijk de volgende vraag op: treden er in metalen die zich in het anormale gebied bevinden bij een verder toenemen van de frequentie relaxatie-effecten op? Of omgekeerd, als in een metaal dat zich bij een gegeven frequentie in het relaxatiegebied B bevindt, de vrije weglengte toeneemt (b.v. doordat men de temperatuur verlaagt), treden er dan anomalieën op analoog aan het anormale skineffect? Wat verwachten we in beide gevallen dat er met de indringdiepte en de oppervlakimpedantie gebeurt?

Laten we eerst eens vanuit het anormale gebied D de frequentie verhogen. Het karakteristieke verschil tussen de gebieden A en B hing samen met het aantal periodes van het wisselveld dat het elektron tussen twee botsingen meemaakt: dit was veel kleiner dan 1 in A ($\tau \ll 1/\omega$) en veel groter dan 1 in B ($\tau \gg 1/\omega$). In het extreem anormale gebied speelt de relaxatietijd τ echter geen rol meer, zodat we hier geen effect kunnen verwachten bij het passeren van de grens $\tau = 1/\omega$. In plaats daarvan komt het er nu op aan of een elektron gedurende zijn verblijf in de skinlaag al of niet veel periodes van het wisselveld meemaakt. De verblijftijd in de skinlaag is ongeveer $|\delta|/v$; en de nieuwe grens is dus $|\delta|/v = 1/\omega$. Met (40) onder verwaarlozing van de factor $2/b$ is dit equivalent met:

$$\omega/\omega_p = v/c. \quad (44)$$

Passeert men vanuit D komend deze grens, dan komt men in een gebied E (fig. 11) dat we het gebied van de anormale reflexie zullen noemen (zie ook E in fig. 2). Hier ziet het veld, evenals in B, in grote lijnen een laag van vrije elektronen, en de indringdiepte wordt evenals in B gelijk aan λ_p . De verblijftijd in de skinlaag is nu ongeveer λ_p/v ; stelt men dit gelijk aan $1/\omega$, dan vindt men weer de grens (44) tussen D en E terug.

Wat is nu nog het verschil tussen de gebieden E en B? In nulde orde is er geen verschil: in beide gevallen schermt de laag van vrije elektronen wel af (indringdiepte λ_p), maar hij absorbeert niet, omdat de snelheid van een geheel vrij elektron in een wisselveld van constante amplitude steeds 90° uit faze is met het veld.

Het verschil is van de eerste orde. In B ontstaat er enige absorptie, doordat de vrije beweging van de elektronen zo nu en dan onderbroken wordt door een botsing. In E moet de reflexie van het elektron aan het oppervlak verantwoordelijk gesteld worden voor de absorptie (tenminste als de reflexie niet spiegelend is); een kleine bijdrage (die bij toenemende frequenties steeds kleiner wordt) tot de absorptie in E wordt nog geleverd door het feit dat het elektron zich door de skinlaag beweegt en dus een wisselveld van variabele amplitude ziet (Holstein ^[15]).

De grens tussen B en E (zie fig. 11) ligt ongeveer daar waar de vrije weglengte gelijk wordt aan de indringdiepte: $l = \lambda_p$, ofwel:

$$\tau = \lambda_p/v. \quad (45)$$

Het maakt nu in E — anders dan in D — een groot verschil of de reflexie spiegelend is, en dus onmerkbaar

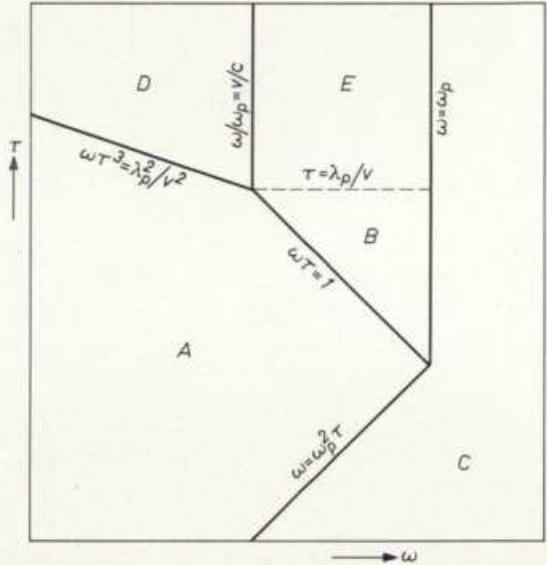


Fig. 11. Het ω - τ -diagram als in fig. 9, met het nieuwe gebied E, dat van de „anormale reflexie”. Zowel in E als in B geldt in „nulde” benadering verg. (34). In eerste benadering wordt de absorptie gegeven in B door verg. (35) en (14), in E door verg. (46).

voor het wisselveld doordat de tangentiële snelheid niet verandert, dan wel diffuus, en dus gelijkwaardig met een botsing. Laten we, om dit plausibel te maken, ons nog even realiseren hoe de energie-overdracht van het wisselveld op een elektron tot stand komt. Beschouw daartoe een elektron in een homogeen wisselveld. Dit is voor de gevallen A en B een redelijke benadering ($l \ll \delta$). De snelheid van het elektron direct na een botsing is volkomen willekeurig en geeft gemiddeld geen bijdrage tot de energie-overdracht van het veld op het elektron. De extra-snelheid die het elektron krijgt ten gevolge van de versnelling door het wisselveld

levert om te beginnen steeds een positieve energie-overdracht van het veld op het elektron. Als $\omega\tau \ll 1$ is, neemt (bij een gegeven veldamplitude) deze energie-overdracht tussen twee botsingen toe als τ groter wordt. Anderzijds is voor $\omega\tau \gg 1$ de totale overgedragen energie tussen twee botsingen onafhankelijk van τ , aangezien, na de overdracht in het begin gedurende omstreeks één periode, er afwisselend evenveel energie van het elektron op het veld overgaat als omgekeerd. De energie-overdracht *per seconde* neemt dan dus af als τ groter wordt.

Om nu van A naar D over te gaan, mogen we in eerste instantie wel gebruik maken van een effectieve τ . Immers in geval D komen de elektronen plotseling de skinlaag binnen. Zij beginnen met energie op te nemen bij de intrede (als men afziet van de willekeurige snelheid bij de intrede); lang vóór het veld een periode volbracht heeft wordt de energie-uitwisseling afgebroken, hetzij bij het oppervlak (diffuse reflexie), hetzij bij het uittreden uit de skinlaag (spiegelende reflexie). Tussen diffuse en spiegelende reflexie verwachten we een verhouding in de absorptie van hoogstens omstreeks een factor 2.

Bij de overgang van B naar E ligt dat anders. In geval E is de intrede in de skinlaag zeer geleidelijk, in die zin dat het elektron vele periodes meemaakt in de tijd dat het veld van nul tot een zekere waarde ziet aangroeien. Er is nu géén duidelijke energie-overdracht in het begin, en de positieve en de negatieve bijdragen blijven elkaar ongeveer compenseren. Is de reflexie aan het oppervlak spiegelend, dan blijft dit zo, en de totale absorptie is veel kleiner dan in B. Is de reflexie echter diffuus, dan is er direct na deze reflexie, evenals na een botsing in B, een duidelijke energie-overdracht van veld op elektron.

We kunnen nu voor E met diffuse reflexie een schatting maken ^[16] van de absorptiefactor uit die voor B met een effectieve τ ; deze is de verblijftijd in de skinlaag per botsing: $\tau_{\text{eff}} = 2\lambda_p/v$. Voor de absorptiefactor in B vinden we, met (35) en (14): $\alpha = 2/\omega_p\tau$. Voor E volgt dan $\alpha = 2/\omega_p\tau_{\text{eff}} = v/c$. Dit scheelt slechts een factor 4/3 met de absorptiefactor die uit de exacte berekening van Holstein ^[15] voor diffuse reflexie volgt:

$$\alpha = 3v/4c. \quad \dots \dots \dots (46)$$

Holstein heeft de berekening ook uitgevoerd voor spiegelende reflexie, maar aangezien alle experimentele re-

sultaten erop wijzen dat de reflexie geheel diffuus is, gaan we hieraan voorbij. De resultaten van Holstein zijn als limietgeval impliciet begrepen in de theorie van Reuter en Sondheimer ^[17].

Voor ons standaardmateriaal ligt de grens (45) bij $1,6 \times 10^{-14}$ s, zodat de metingen van Försterling en Freedericksz (zie tabel II) min of meer in het grensgebied liggen. In tabel V hebben we aan tabel II nog toegevoegd $\tau_E = 8\lambda_p/3v$, d.i. de effectieve τ die met (35) in E de absorptie levert. Het is wel duidelijk dat de theorie voor het E-gebied geen verklaring geeft voor deze optische resultaten: in de eerste plaats zou in het E-gebied τ_E beneden de echte τ moeten liggen; bovendien ligt τ_E nog verder van $\tau(\text{opt})$ af dan τ . Voor de lage waarden van $\tau(\text{opt})$ zal men dus nog steeds zijn toevlucht moeten zoeken tot een verklaring als op blz. 214 genoemd.

Tabel V.

τ in 10^{-14} s	Cu	Ag	Au
$\tau(\text{opt})$	0,46	0,95	1,7
$\tau(\sigma)$	2,5	3,9	2,9
τ_E	3,1	4,2	4,2

Om de theorie in het E-gebied, en met name (46), te toetsen, moet men absorptiemetingen doen bij hoge waarden van τ , d.w.z. aan zuivere materialen bij lage temperaturen en daarbij veel aandacht besteden aan het zuiver houden van het oppervlak. Voor een uitvoerige vergelijking van gepubliceerd experimenteel materiaal met de theorie van Reuter en Sondheimer verwijzen we naar Dingle ^[18]. Wij noemen hier ter illustratie alleen de resultaten van Ramanathan ^[19] en die van Biondi ^[20].

Ramanathan vond voor koper bij $1,4 \mu\text{m}$ en $4,2^\circ\text{K}$ een absorptiefactor 0,006. Voor ons standaardmetaal levert (46) een absorptiefactor 0,0035. De overeenstemming is heel redelijk, vooral in tegenstelling met de voorspelling $\alpha \approx 0,00003$ van de klassieke theorie met (35) voor dit geval.

Biondi heeft in een golflengtegebied van $0,3$ tot $3,3 \mu\text{m}$ en bij omstreeks $4,2^\circ\text{K}$ de absorptiefactor gemeten van koper en zilver met (volgens weerstandsmetingen) een τ van omstreeks 10^{-11} s. Hij vond, naast enkele verwachte absorptiebanden (vgl. blz. 214) bij de kleinere golflengtes, voor $\lambda > 1,5 \mu\text{m}$ een absorptiefactor onafhankelijk van de golflengte (en onafhankelijk van de temperatuur, maar het bestreken temperatuurgebied was klein: $3,4\text{--}4,2^\circ\text{K}$), in kwalitatieve overeenstemming met (46). Numeriek gezien, is de conclusie van Biondi dat men, zelfs bij een vrijwel ideaal oppervlak en ver van de absorptiebanden, in het extreme E-gebied met de uitdrukking (46) de gemeten absorptie — hoewel voor een belangrijk gedeelte — toch

^[15] T. Holstein, Phys. Rev. **88**, 1427, 1952.

^[16] Zie ook de schatting van Holstein, weergegeven bij Biondi ^[20].

^[17] R. B. Dingle, Physica **19**, 311, 1953.

^[18] R. B. Dingle, Physica **19**, 348, 1953.

^[19] K. Ramanathan, Proc. Phys. Soc. A **65**, 532, 1952.

^[20] M. A. Biondi, Phys. Rev. **102**, 964, 1956.

niet volledig kan verdisconteren. Uit een theoretisch heronderzoek van de mogelijke processen onder de omstandigheden van het E-gebied is een „volume-absorptieproces” in de skinlaag (in tegenstelling met het oppervlakproces dat bij (46) hoort) naar voren gekomen dat voor de resterende absorptie verantwoordelijk gesteld moet worden.

In tabel VI zijn de door Biondi gegeven theoretisch voorspelde en experimenteel gevonden waarden gereproduceerd.

Tabel VI. De absorptiefactor van koper en zilver volgens Biondi ^[20].

	Cu	Ag
oppervlak-effect (verg. 46)	0,0029	0,0036
volume-effect	20	09
totaal	49	45
experimenteel	50	44

Het volume-absorptieproces komt in het kort hierop neer. In zuivere metalen ontstaat de absorptie die gecorreleerd is met de „gewone” relaxatietijd τ (in A en B) doordat de elektronen botsen met fononen (quanta van de thermische roostertrillingen). Bij zeer lage temperaturen zijn er geen fononen aanwezig ($\tau \rightarrow \infty$). Het volgende absorptieproces — onder behoud van energie en impuls — is nu toch mogelijk: terwijl het elektron een foton (quantum van het wisselveld) absorbeert, genereert het (door de wisselwerking met het kristalrooster) een fonon.

Slotopmerkingen

Fig. 12 geeft nogmaals het ω - τ -diagram, nu voorzien van schalen resp. in s en rad/s langs de τ -as en de ω -as. Onder de ω -as staat ook een schaal voor de golflengte λ . In dit diagram zijn de grenzen tussen de gebieden A, B, C, D en E voor een aantal eenwaardige metalen aangegeven. Deze zijn berekend op grond van de formules voor de vrije-elektronentheorie, waarbij n_e bepaald is uit het atoomgewicht en het soortelijk gewicht met de veronderstelling dat het aantal geleidingselektronen per atoom één is.

Uit deze figuur ziet men dat de radiotechnicus met andere grensgevallen van het vrije-elektronenmodel te maken heeft dan de opticus. De radiotechnicus, die zich vooralsnog in het algemeen niet met golven bezighoudt die korter zijn dan 1 mm, heeft slechts te doen met het normale skineffect (A) en het anomale skineffect (D). Voor de opticus, die zich beweegt in het zichtbare spectrum (het gearceerde gebiedje op de λ -schaal) of het nabije infrarood, is alleen het relaxatiegebied — met normale reflexie B dan wel anomale reflexie E —

van belang. Alleen als hij zich in het verre infrarood gaat bewegen, kan hij nog in A terechtkomen (zie b.v. het gearceerde gebiedje I, dat met de op blz. 214 aangestipte experimenten van Hagen en Rubens correspondeert), maar D valt buiten zijn terrein. E onderscheidt zich van B doordat de absorptie aanzienlijk hoger is dan men met de voor B geldende formule zou berekenen, en wel omdat de botsingen aan het oppervlak relatief ten opzichte van die met het rooster een belangrijke plaats gaan innemen.

Het onderscheid tussen D en A is van dezelfde aard als tussen E en B: de absorptie in D is groter dan men uit de formules voor A zou afleiden. We illustreren dit nog aan een trilholtte voor centimetergolven, waarvan men de kwaliteit poogt te vergroten door een beter geleidend materiaal te gebruiken. We beschouwen daartoe een cilindrische trilholtte waarvan de hoogte gelijk is aan de diameter ($= 2a$) en waarin de TE₀₁₁-trillingswijze (de zg. golfmetermodus) is geëxciteerd. Dan is $a = 0,66 \lambda$ (waarin λ de golflengte in vacuüm is) en $Q = a/2\delta'$. Voor $\lambda = 3$ cm en koper bij kamertemperatuur ($\sigma = 6 \times 10^7 \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$, $\tau = 4 \times 10^{-14} \text{s}$) is de theorie van het klassieke skineffect nog wel geldig (zie fig. 12), zodat, volgens verg. (15), $\delta' = \frac{1}{2}\delta_k$. Met $\delta_k^2 = 2\lambda_p^2/\omega\tau$ (verg. 26) vinden we $\delta' = 0,3 \mu\text{m}$ en $Q = 30\,000$ (voor λ_p , en hieronder voor v , is de waarde voor het standaardmetaal, tabel I, gekozen). Gebruikt men nu een materiaal met een τ die 10^4 maal zo groot is (b.v. zeer zuiver koper bij 4 °K), dan zou men op grond van de klassieke formules verwachten dat δ' 100 maal zo klein, dus Q 100 maal zo groot wordt. Uit fig. 12 volgt echter dat het resultaat beter benaderd zal worden door de anomale limiet. Met $\delta' = \frac{1}{2}|\delta|$ en $|\delta|^3 = (2/b)(v/\omega)\lambda_p^2$ (zie verg. 40 en 41) vinden we $\delta' \approx 0,07 \mu\text{m}$, dit is slechts een factor 4 maal zo klein. Q wordt dus slechts een factor 4, in plaats van 100, maal zo groot als bij de trilholtte van koper bij kamertemperatuur.

Voor de opticus worden de beschreven effecten in B en E, met name het beschreven absorptiemechanisme, veelal overspoeld door de absorptiebanden die van andere oorsprong zijn. Bij hogere frequenties geldt dit in steeds sterkere mate: er zijn steeds meer processen aan te wijzen die door de straling aangeslagen kunnen worden. Dientengevolge is het transmissiegebied C, dat men op grond van het vrije-elektronenmodel voor de metalen in het ultraviolet of het röntgengebied verwacht, in de praktijk van geen belang. Niettemin is de min of meer scherpe overgang van B of E naar C door de experimenten van Wood ^[8] overtuigend aangetoond.

De in het voorgaande geschetste theorie is vanzelfsprekend meestal veel te grof als men de verschijnselen kwantitatief en in detail gaat onderzoeken. Van de te-

kortkomingen die zich al spoedig openbaren bij een nadere beschouwing noemen we er twee. In de eerste plaats is het te naïef om te veronderstellen dat men in het hele frequentiegebied met één relaxatietijd kan werken. In de tweede plaats is in vrijwel alle metalen de snelheid van de elektronen (de Fermi-snelheid) af-

hankelijk van hun bewegingsrichting in de kristalstructuur.

Ondanks deze en andere tekortkomingen moge het voorgaande een indruk geven van de mogelijkheid om met eenvoudige middelen een grote lijn te trekken door een aantal verschijnselen van uiteenlopende aard.

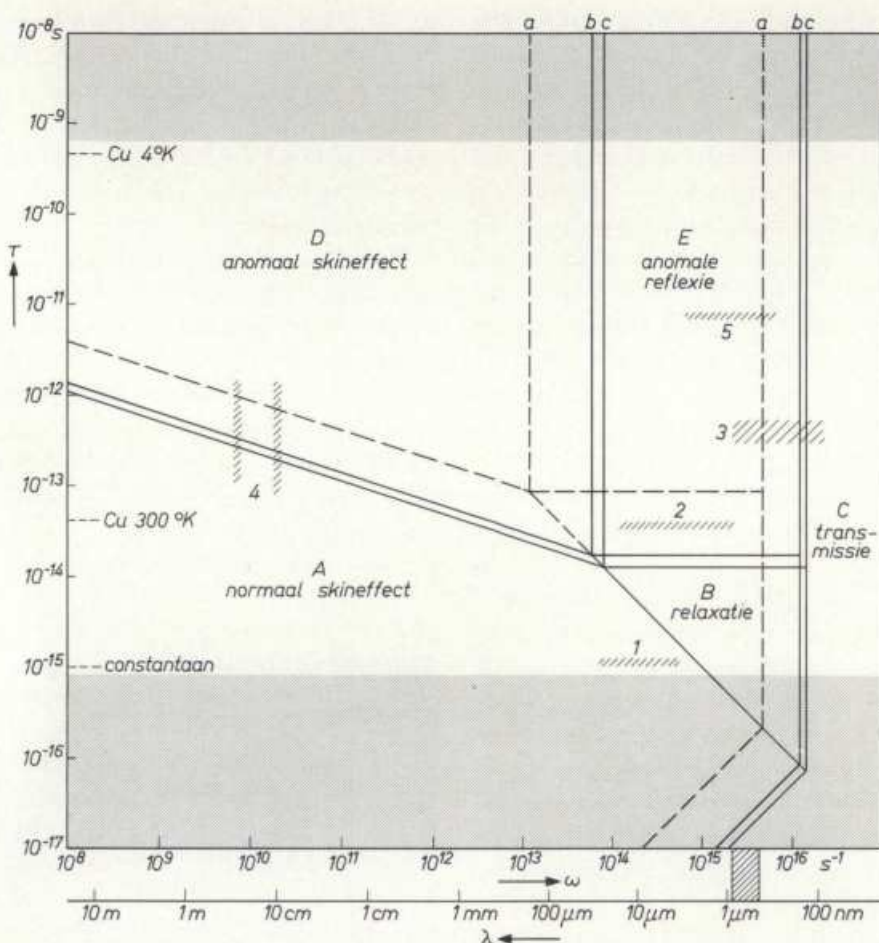


Fig. 12. Het ω - τ -diagram voor een aantal eenwaardige metalen. De elektronenconcentratie n_e is verkregen uit het soortelijk gewicht en het atoomgewicht met de veronderstelling dat het aantal elektronen per atoom 1 is, en de Fermi-snelheid v en de plasmafrequentie ω_p zijn daaruit afgeleid met de formules voor het vrije-elektronenmodel. a) Cesium, b) het standaardmetaal, c) koper. De waarden van n_e voor de andere alkalimetalen en voor zilver en goud liggen tussen die van cesium en koper in en corresponderen dus met tussenliggende diagrammen. A gebied van het klassieke skineffect, B relaxatiegebied met normale reflexie, C transmissiegebied, D gebied van het anomaal skineffect, E relaxatiegebied met anomale reflexie.

De grijze strookjes geven het ω/τ -gebied aan waarin de vermelde onderzoekers metingen hebben gedaan: 1 Hagen-Rubens^[5], 2 Försterling-Fredericksz^[7], 3 Wood^[8], 4 Chambers^[13], 5 Biondi^[20]. (De τ -waarde van 3 is onzeker, Wood heeft geen waarden voor het geleidingsvermogen vermeld.)

Horizontaal is ook een golflengteschaal aangebracht; het hierin gearceerde gebiedje is dat van het zichtbare spectrum.

Samenvatting. Het skineffect bij hoge frequenties wordt beschouwd voor het geval dat een elektromagnetische golf loodrecht op het vlakke oppervlak van een metaal valt. Er zijn dan eenvoudige relaties tussen de begrippen „skindikte”, „brekingsindex” en „oppervlakimpedantie”. Aan de hand van het vrije-elektronenmodel voor een metaal worden de complicaties besproken die optreden bij hoge frequenties. In het klassieke model van Drude vindt men bij toenemende frequenties na het klassieke skineffect

eerst een „relaxatiegebied” (met volledige reflexie) gevolgd door een „transmissiegebied”. Houdt men nog rekening met de vrije weglengte van de elektronen, en met name met het feit dat deze groter kan worden dan de skindikte, dan vindt men voor zuivere metalen tussen het klassieke en het relaxatiegebied het gebied van het „anomaal skineffect”; bovendien wordt in het relaxatiegebied de absorptie „anomaal”. In beide gevallen is de absorptie groter dan men klassiek zou berekenen.

Kristalgroei met alternerende temperatuurgradiënt

H. Scholz

In het Philipslaboratorium te Aken zijn reeds enige tijd onderzoeken gaande die gericht zijn op het maken van monokristallen met behulp van chemische transportreacties [1]. Een chemische transportreactie wordt teweegebracht door middel van een temperatuurgradiënt in een systeem dat bestaat uit een vaste faze en een vloeibare of gasvormige faze; de reactie is gebaseerd op de temperatuurafhankelijkheid van de evenwichtsconstante van het systeem. Indien de transportreactie endotherm is, vindt het transport plaats van de hete naar de koude zone, waarbij de transporterende faze in de hete zone onverzadigd en in de koude zone oververzadigd is, met daartussen een verzadigingsgrens. Indien de reactie exotherm is, verloopt het transport in omgekeerde richting.

Wij hebben kunnen aantonen dat het voor het kweken van monokristallen bijzondere voordelen heeft de temperatuurgradiënt periodiek van teken te laten veranderen, in plaats van zoals gebruikelijk de temperatuurgradiënt constant te houden. Bij een alternerende temperatuurgradiënt verloopt het materietransport naar de plaats met de laagste *gemiddelde* temperatuur (bij endotherme reacties). Als gevolg van het alterneren van de temperatuurgradiënt wisselen tijden van kristalgroei en van afbraak elkaar af, hetgeen een sterke selectie van de groeiende kristallen teweebrengt. Voor systemen waarbij de kristalgroei in een constant temperatuurverval met hoge kiemvormingssnelheden gepaard gaat en er dientengevolge alleen kleine kristallen worden gevormd, kan de toepassing van een alternerende temperatuurgradiënt leiden tot een sterke vermindering van het aantal kiemen en derhalve tot de vorming van grotere kristallen.

Wanneer de kweektijd voldoende lang is, zullen uiteindelijk alleen kristallen overblijven op de plaats met de laagste gemiddelde temperatuur (zie fig. 1, waarin het transport van GaP bij een constante en bij een alternerende temperatuurgradiënt weergegeven is). Gebleken is dat men goede resultaten krijgt indien men, aan het begin van de kweek, op de genoemde plaats een speciaal uitgezocht kiemkristal aanbrengt; de spontaan gevormde kristalkiemen hebben niet altijd de perfectie die men zou wensen.

Een verrassend aspect van de door ons beschreven methode is dat gedurende de groei de temperatuur op alle plaatsen van het systeem gedurende sommige

tijden lager is dan op de plaats waar de kristalgroei maximaal is (de plaats met de laagste *gemiddelde* temperatuur). Bepalend voor de kristalgroei is niet het grootste aanwezige temperatuurverschil in het systeem, maar het verschil in gemiddelde temperatuur. Met deze methode kan men zeer kleine effectieve temperatuurverschillen realiseren, door middel van verschillen van gemiddelde temperaturen.

Er zijn zowel *lineaire* als *axiaalsymmetrische* proefopstellingen ontwikkeld [2]. Wij bespreken hier alleen de axiaalsymmetrische methodes, waarvan twee typen in principe mogelijk zijn:

- I. Een axiaalsymmetrisch reactievat wordt gedraaid in een ruimte met een temperatuurverval loodrecht op de as. De periode van de variatie van de temperatuurgradiënt in elk punt van het vat is hierbij gelijk aan de omlooptijd van het reactievat.
- II. De temperatuur van de gehele wand wordt perio-

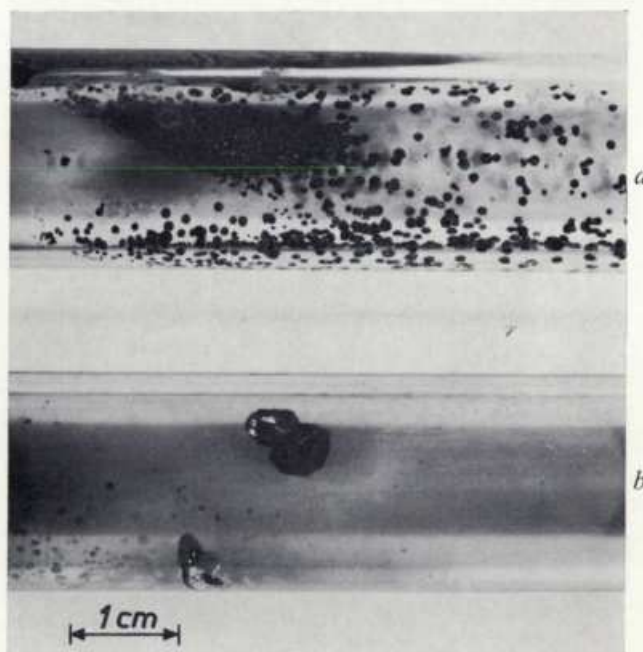


Fig. 1. Kristalkweek van GaP met broom als transportmiddel, bij a) een constante temperatuurgradiënt en b) een alternerende gradiënt. Voor het overige waren de druk- en temperatuurcondities bij deze experimenten vergelijkbaar. De kristallen hebben zich in (b) in het midden van de buis gevormd, aangezien dit de plaats is met de laagste gemiddelde temperatuur.

[1] Zie b.v. A. Rabenau, Philips techn. T. 26, 283, 1964/65.

[2] Voor een meer gedetailleerde bespreking van de methode, zie H. Scholz en R. Kluckow, Chemie-Ing.-Technik 37, 1173, 1965, en Crystal Growth (suppl. J. Phys. Chem. Solids), Proc. int. Conf. Boston 1966, blz. 475.

diek verhoogd en verlaagd ten opzichte van de temperatuur in het midden van het reactievat. Draaien van het vat heeft hier slechts ten doel ongelijkmatigheden in de temperatuur te vereffenen, die het gevolg zijn van een niet geheel symmetrische opbouw van de opstelling.

In fig. 2 is een doorsnede van een proefopstelling

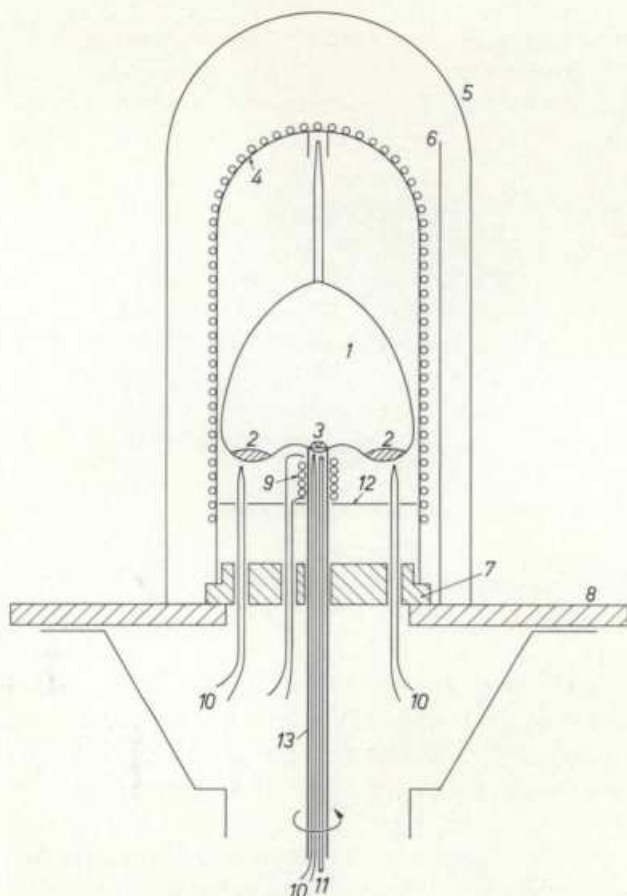


Fig. 2. Proefopstelling voor axiaalsymmetrische methodes. 1 reactievat, dat men langzaam laat roteren. 2 moedersubstantie. 3 kiemkristal. 4 stolp van kwartsglas, waarvan de kop en het cilindervormige gedeelte door twee afzonderlijke gloeispiralen verhit kunnen worden. 5 stolp van hittevast glas, ter vermindering van warmteverliezen door convectie. 6 warmtereflecterend scherm, met behulp waarvan een temperatuurgradiënt wordt opgewekt loodrecht op de as. 7 steun van asbestcement voor de kwartsglasstolp. 8 grondplaat van asbestcement. 9 verhitting voor de onderzijde. 10 drie thermo-elementen. 11 buisje voor luchtcooling. 12 stralingsscherm. 13 holle as, die het reactievat draagt en die door een motor gedreven wordt.

weergegeven. Een draaibaar reactievat 1 is omgeven door twee glazen stolpen 4 en 5, de eerste is van kwartsglas en kan met een gloeispiraal verhit worden, de tweede is van een hittevast glas en dient om warmteverliezen door convectie te verminderen. Langs de wand van het reactievat wordt de moedersubstantie 2 aangebracht, in het midden van het vat het kiemkristal 3. Voor de toepassing van methode I wordt de vereiste temperatuurgradiënt opgewekt met behulp van het warmtereflecterende scherm 6. Bij toepassing van methode II wordt dit scherm weggelaten.

Met de hier geschetste opstelling kunnen temperaturen tot 700°C worden bereikt. Indien men de binnenzijde van de buitenste stolp met een dun laagje goud bedekt, kan men tot een temperatuur van 900°C komen. (Deze mogelijkheid bestaat alleen bij toepassing van methode II; het met goud bedekte glas zou immers de totstandkoming verhinderen van het voor methode I vereiste temperatuurverval.)

Wij geven een nadere toelichting van methode I. Hiertoe beschouwen we de doorsnede door het reactievat die in fig. 3 is weergegeven. Onder de schets van de doorsnede is in dezelfde figuur voor een tweetal temperatuurverdelingen het temperatuurverval aangegeven langs de lijn waar dit verval het grootst is.

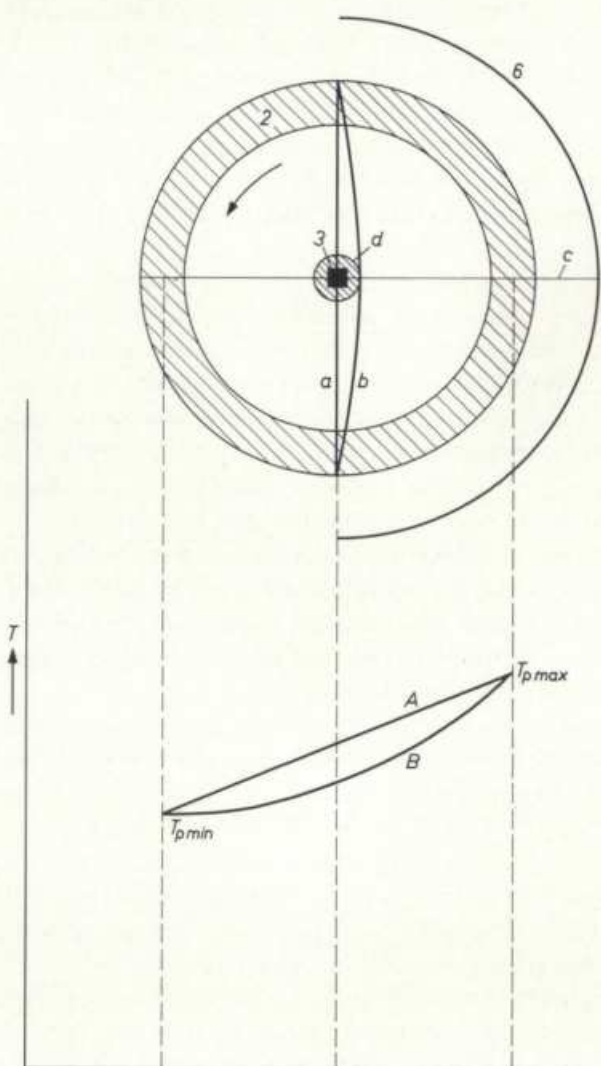


Fig. 3. Boven: dwarsdoorsnede door het reactievat. 2 de moedersubstantie. 3 het kiemkristal. 6 het reflecterende scherm. c lijn waarlangs het temperatuurverval het grootst is. De lijnen a en b geven de verzadigingsgrenzen aan die optreden als de temperatuurverdeling langs lijn c resp. het verloop A en B heeft dat in de onderste figuur is getekend.

Bij de verdeling A is geen kristalgroei mogelijk. d is de grens tot waar kristalgroei mogelijk is bij een temperatuurverdeling B.

We willen nu eerst weten onder welke temperatuurcondities materiële transport zal plaatsvinden van de wand van het reactievat naar het centrum. Gezien de rotatiesymmetrie van het reactievat, is het hiervoor voldoende te rekenen met de gemiddelde temperatuur $\bar{T}_p$ van één punt van de wand en de temperatuur van het centrum T_c .

Bij een lineair temperatuurverval langs de door ons beschouwde lijn is $\bar{T}_p = T_c$ en zal er dus geen materiële transport plaatsvinden. De verzadigingsgrens van het systeem loopt in dit geval door het centrum loodrecht op de richting van het grootste temperatuurverval (curve *a*). Verlagen we de temperatuur van het centrum, teneinde materiaaltransport van de wand naar het centrum te doen plaatsvinden, dan verschuift daarmee de verzadigingsgrens, waardoor het kiemkristal in het oververzadigde gebied komt (curve *b*).

Bij het draaien van het reactievat gaat alle substantie die zich niet te dicht bij het centrum bevindt afwisselend door een oververzadigd en een onverzadigd gebied. Hier vindt de gewenste kristalselectie plaats. Geen spontaan gevormde kiem heeft in dit gebied enige overlevingskans.

Het smalle gebiedje rondom het centrum is daarentegen voortdurend oververzadigd. In verband hiermee dienen speciale maatregelen te worden genomen om te waarborgen dat in dit gebied uitsluitend het aangebrachte kiemkristal aanwezig is. Op eenvoudige wijze realiseert men dit door, vóór de kweek begint, het centrum gedurende enige tijd op een temperatuur te houden die hoger is dan $\bar{T}_p$. Er kunnen natuurlijk nog kiemen in het oververzadigde gebied ontstaan tijdens de kweek, doch dit heeft zich bij onze experimenten maar zelden voorgedaan; hetgeen wel te begrijpen is, als men bedenkt dat het desbetreffende gebiedje zeer klein is.

Fig. 4 toont een volgens methode I verkregen monokristal van $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$. De experimentele gegevens hierover vindt men in tabel I [3].

In fig. 5 zijn de temperatuur-tijd-curven gegeven van een experiment volgens methode II. De temperatuur van het centrum wordt constant gehouden, terwijl de wandtemperatuur periodiek verhoogd en verlaagd wordt. Bij toepassing van deze methode treedt er ook in het centrum selectie op, aangezien het centrum in de periode van verhoogde temperatuur heter is dan de

Tabel I. Experimentele gegevens van een kristalkweek van $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ volgens methode I.

Gewicht kiemkristal	6,8 mg
Transportmiddel bij 20 °C	100 torr HCl en 118 torr Cl ₂
$T_{p \text{ max}}$	583 °C
$T_{p \text{ min}}$	533 °C
T_c	545 °C
Omlooptijd	100 min
Groeitijd	600 h
Gewicht kristal	19 mg

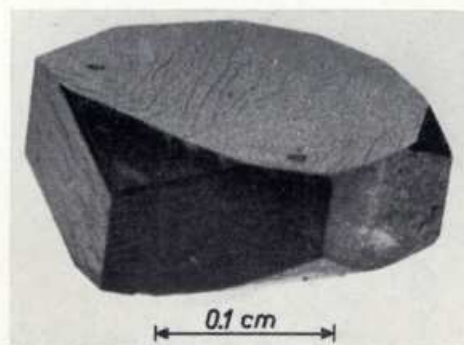


Fig. 4. Een $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ -kristal verkregen volgens methode I. Voor de experimentele gegevens, zie tabel I.

gehele wand. Ook het centrum komt dus afwisselend in een onverzadigde en in een oververzadigde toestand.

In tabel II vindt men de experimentele gegevens over een tweetal volgens methode II verkregen kristallen. Fig. 6 toont één hiervan, die afmetingen van ca. 1 cm heeft. Fig. 7 geeft het reactievat te zien met het kristal en het restant van de moedersubstantie.

Vergelikt men de methodes I en II, dan laat zich het volgende vaststellen. Methode II is in het algemeen te prefereren. Het feit dat er ook in het centrum selectie plaatsvindt, maakt de methode in principe eenvoudiger.

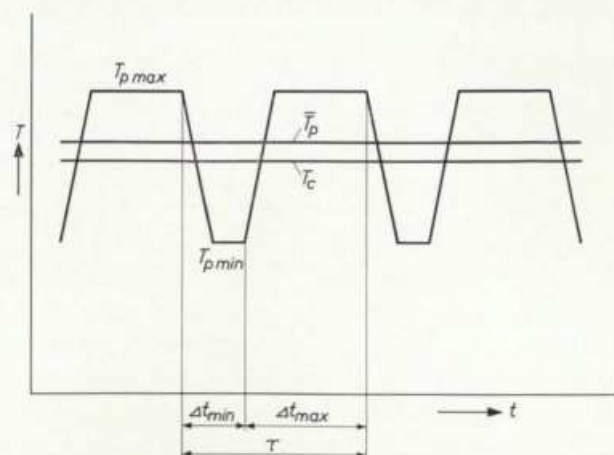


Fig. 5. Temperatuur-tijd-curven voor de axiaalsymmetrische methode II, waarbij het reactievat niet behoeft te roteren maar het draaien slechts dient om kleine onregelmatigheden in de temperatuur te verffenen.

[3] De groeisnelheid bij dit experiment is klein vergeleken met de groeisnelheid bij de hieronder te bespreken experimenten volgens methode II. De verklaring ligt in het feit dat de temperatuur van het centrum binnen het reactievat sterk blijkt af te wijken van de waarde die men vindt door meting van buiten af. De werkelijke waarden van T_c en $\bar{T}_p$ liggen veel dichter bij elkaar dan hier is opgegeven. Dit is gebleken uit metingen die gelijktijdig binnen en buiten het reactievat werden verricht.

Tabel II. Experimentele gegevens van een tweetal proeven met α -Fe₂O₃ volgens methode II.

	Proef 1	Proef 2
Gewicht kiemkristal	1,5 mg	1,1 mg
Transportmiddel bij 20 °C	100 torr HCl	112 torr HCl
T_p max	592 °C	594 °C
T_p min	542 °C	546 °C
$\bar{T}_p$	575 °C	578 °C
T_c	556 °C	558 °C
$\Delta t_{\max}$ [*]	1 h	1 h
$\Delta t_{\min}$ [*]	0,5 h	0,5 h
Groeitijd	2400 h	428 h
Gewicht kristal	398 mg	ca. 100 mg

[*] $\Delta t_{\max} + \Delta t_{\min} = \tau$, zie fig. 5.

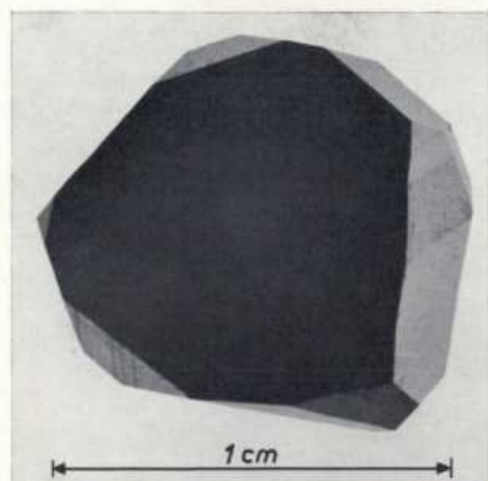


Fig. 6. Een α -Fe₂O₃-kristal verkregen volgens methode II. Experimentele gegevens in tabel II.

diger. Bovendien hebben de periodes van afbraak van het groeiende kiemkristal het nuttige effect dat onvolkomenheden in het kristal nog kunnen worden verwijderd. Methode II is evenwel niet te gebruiken als er in

Samenvatting. In het laboratorium te Aken verricht men reeds enige tijd onderzoekingen aan kristalgroei door middel van chemische transportreacties, waarbij normaal gewerkt wordt met een constant temperatuurverval. Deze methode kan bij bepaalde systemen als gevolg van een te hoge kiemvormingssnelheid tot resultaat hebben dat uitsluitend zeer kleine kristallen worden gevormd. Het toepassen van een alternerende temperatuurgradiënt kan in deze gevallen leiden tot een sterke vermindering van het aantal kiemen en tot de vorming van grote kristallen. Bij de op dit principe gebaseerde methodes wordt de kristalgroei bepaald



Fig. 7. Het reactievat met een volgens methode II verkregen kristal. Ook de (ringvormige) rest van de moedersubstantie is zichtbaar.

het systeem tijdens het groeiproces vloeistof wordt gevormd; de condenserende vloeistofdruppels kunnen de groei van het kristal ongunstig beïnvloeden. Bij toepassing van methode I kan men (mits men het reactievat voldoende langzaam laat draaien) ervoor zorgen dat het optreden van vloeistof beperkt blijft tot de plaats waar de wandtemperatuur het laagst is.

door de in de tijd gemiddelde temperatuur in het systeem. Bij de besproken experimenten wordt gebruik gemaakt van een axiaalsymmetrische proefopstelling. Bij een der mogelijke methodes wordt een axiaalsymmetrisch reactievat gedraaid in een ruimte met een temperatuurverval loodrecht op de as. De moedersubstantie is langs de wand van het vat aangebracht en een kiemkristal in het midden van het vat. Bij een andere methode wordt de temperatuur van de gehele wand van het reactievat periodiek verhoogd en verlaagd ten opzichte van het in het midden geplaatste kiemkristal. Er werden α -Fe₂O₃-kristallen van ca. 1 cm verkregen.

Een lilliput-elektromotor voor experimenten over de gezichtszin

Fysiologische onderzoeken hebben aangetoond dat het beeld dat bij het zien van een voorwerp op het netvlies van het menselijk oog wordt geprojecteerd, zich voortdurend een weinig op het netvlies verplaatst, ook al tracht de proefpersoon het voorwerp te fixeren. De oorzaak zijn kleine onwillekeurige trillingen en bewegingen van de oogbal, waarvan we ons niet bewust zijn. Maakt men een beweging van de oogbal ten opzichte van het object onmogelijk door dit laatste mechanisch met de oogbal te verbinden (hieronder zal blijken hoe men dit kan doen), dan heeft een normale proefpersoon de gewaarwording dat het voorwerp na enkele seconden „verdwijnt”; eenvoudiger gezegd: de proefpersoon *ziet* het object niet meer.

heer Gerrits is in dit laboratorium een elektromotortje voor dit doel geconstrueerd. Het gewicht hiervan mocht slechts enkele grammen bedragen, terwijl bovendien nog vrij lastige eisen aan de configuratie en aan de prestaties (regelmaticheid van loop) werden gesteld. Uit een korte beschrijving moge blijken, hoe met de thans beschikbare miniatuurtechnieken het gewenste resultaat verkregen is. Het motortje weegt minder dan 4 gram.

De essentie van de hele opstelling (die, afgezien van het motortje, in Nijmegen is ontwikkeld) is in *fig. 1* weergegeven. Op de oogbal van de ruggelings uitgestrekte proefpersoon wordt ter plaatse van de iris een ca. 2 cm lang aluminium busje geplaatst en door

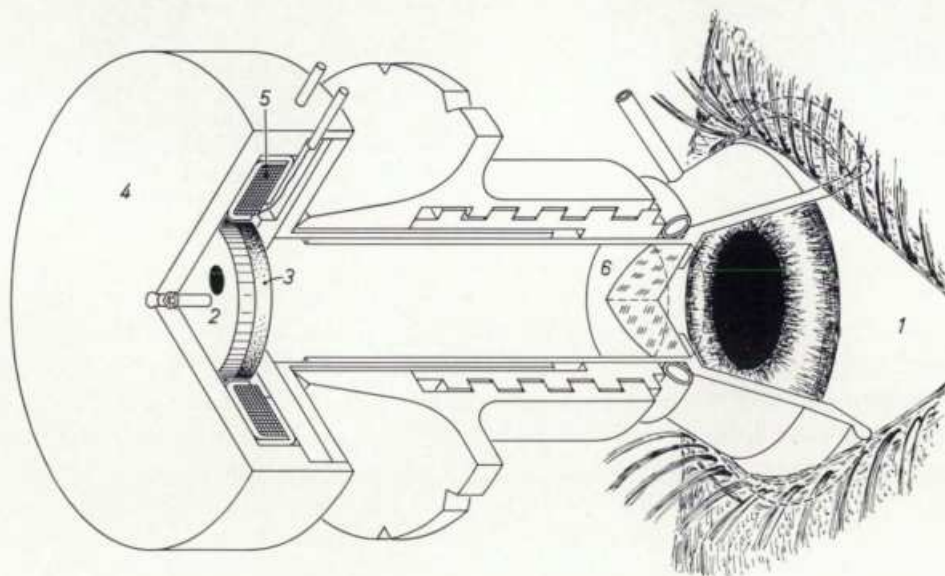


Fig. 1. Het apparaatje dat op de oogbal wordt geplaatst, opengesneden: 1 oogbal; 2 doorzichtig schijfje met waarnemingsobject (zwarte stip) en ringvormige rotor 3; 4 doorzichtig statorhuis met statorspoeltje 5; 6 lens.

Dit wijst erop dat een beeld alleen door overgangsvormen op de retina naar de hersenen wordt overgebracht.

Door dr. H. J. M. Gerrits te Nijmegen zijn hierover uitvoerige onderzoeken verricht^[1]. Daartoe was het niet alleen gewenst het waar te nemen voorwerp ten opzichte van de oogbal te kunnen immobiliseren, maar ook er een, in snelheid regelbare, beweging ten opzichte van het oog aan te kunnen geven. Op verzoek van de

een geringe onderdruk vastgezogen. Aan het einde van het busje bevindt zich het waar te nemen voorwerp: een zwarte stip of andere figuur, excentrisch getekend op een doorzichtig schijfje (2). Het oog kan dit scherp zien dank zij een lensje dat op enkele mm van het oog

[1] H. J. M. Gerrits, dissertatie Nijmegen 1967.

[2] W. L. L. Lenders, Het orthocyclisch wikkelen van spoelen, Philips techn. T. 23, 381-395, 1961.

in het busje bevestigd is. Het schijfje moet kunnen roteren en het motortje is dus hieromheen gebouwd: in het schijfje is een asje bevestigd, gelagerd in twee robbijnen welke zijn gevat in een doorzichtig statorhuis; aan zijn omtrek draagt het schijfje een ringvormige rotor (3) van ferroxdure met 16 regelmatig verdeelde radiale polen, afwisselend N en Z. Het statorhuis zit aan een aluminium huls die over de eerder genoemde bus is geschoven; bus en huls dragen een schroefdraad van

door ook de hoeksnelheid merkbaar, tenzij men het traagheidsmoment van de rotor groot maakt of tot een tweefazig type motor overgaat; zowel het een als het ander was hier niet doenlijk met het oog op de gewichtsbeperving. Om desondanks aan het oog een voldoende gelijkmatig lopend object te vertonen, wordt de kunstgreep van stroboscopische verlichting toegepast: men laat het motortje met het maximale toerental (50 omw/s) roteren, waarbij de hoeksnelheid zeer goed

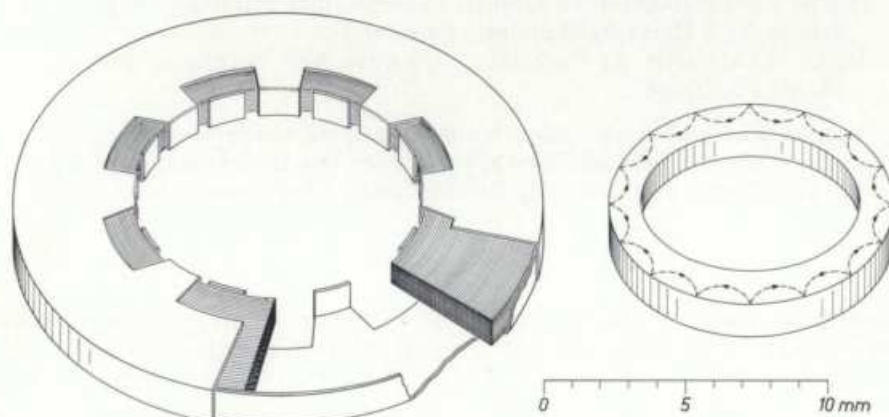


Fig. 2. Links de stator, bestaande uit twee ringvormige, op elkaar passende ijzeren deksels, waartussen het spoeltje. Rechts de ringvormige rotor van ferroxdure, met 16 polen. De stippellijnen geven de magnetisatie aan. De luchtspleet tussen rotor en stator is minder dan 0,1 mm.

kunststof, waardoor het motortje met het waarnemingsobject op de juiste afstand voor duidelijk zien kan worden gebracht.

De stator bestaat uit twee ijzeren ringvormige lichaampjes, die als de helften van een schoensmeerdoos in elkaar passen; zie fig. 2. Elke helft heeft 8 polen, en het geheel omsluit een spoel van 950 windingen koperdraad van 50 μ m dikte. Om een enigszins hanteerbare en precies in de beschikbare ruimte passende spoel te krijgen, is deze orthocyclisch gewikkeld [2]. De spoel wordt met 5 V wisselspanning gevoed uit een toengenerator, waarvan de frequentie instelbaar is van 1 tot 400 Hz; het opgenomen vermogen bedraagt ca. 50 mW.

Het motortje gedraagt zich in wezen als een enkel-fazige synchrone stapmotor. Bij ongeveer 16 Hz komt de rotor in resonantie en loopt dan vanzelf aan. Bij variatie van de voedingsfrequentie blijft de rotor vervolgens synchroon meelopen (toerental 1/8 tot 50 omwentelingen per seconde), en de proefpersoon ziet dus het object, dat door een lichtbron achter het doorzichtige statorhuis wordt verlicht, rond het centrum van het gezichtsveld wentelen.

Het beschreven soort motor heeft van nature een pulserend koppel. Bij kleine toerentallen varieert daar-

constant is, en men gebruikt als lichtbron een stroboscooplamp, die men door middel van een geschikte schakeling iets meer of minder dan 50 flitsen per seconde laat geven. De proefpersoon ziet dan het object met de verschillfrequentie rondlopen.

Behalve de toevoerdraden van het motortje moet er op het apparaatje een pompslangetje worden aangesloten om de onderdruk in het busje te onderhouden, en ook nog een toe- en afvoerslangetje voor water, dat door een ringleidinkje om het lensje (6 in fig. 1) stroomt en dit op 37 °C houdt om beslaan hiervan tegen te gaan.

Alles bij elkaar genomen, heeft het apparaatje dat op de oogbal wordt bevestigd toch een niet weg te cijferen omvang en gewicht. Door lichte plaatselijke anesthesie wordt het aanbrengen van dit geheel op het oog voor de proefpersoon draaglijk gemaakt.

Voor een uitvoeriger beschrijving van de apparatuur en de experimenten zij naar de reeds genoemde dissertatie [1] verwezen.

B. Bollée

Ir. B. Bollée, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

Recente wetenschappelijke publikaties

Deze publikaties zijn afkomstig van medewerkers van laboratoria en fabrieken, behorende tot of samenwerkende met ondernemingen van het Philipsconcern, in het bijzonder van medewerkers van de navolgende research-laboratoria:

Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven	<i>E</i>
Mullard Research Laboratories, Redhill (Surrey), Engeland	<i>M</i>
Laboratoires d'Electronique et de Physique Appliquée, Limeil-Brevannes (S.O.), Frankrijk	<i>L</i>
Philips Zentrallaboratorium GmbH, Laboratorium Aken, Weisshausstrasse, 51 Aachen, Duitsland	<i>A</i>
Philips Zentrallaboratorium GmbH, Laboratorium Hamburg, Vogt-Kölln-Strasse 30, 2 Hamburg-Stellingen, Duitsland	<i>H</i>
MBLE Laboratoire de Recherche, 2 avenue Van Becelaere, Brussel 17 (Boitsfort), België.	<i>B</i>

Van de meeste dezer publikaties zullen binnenkort overdrukken beschikbaar zijn. Men kan deze aanvragen bij het betrokken laboratorium (zie de codeletter) of bij de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

- P. Billard, J. Donjon & G. Marie:** Application de la modulation de lumière aux télécommunications. *Acta electronica* **9**, 305-313, 1965 (No. 4). *L*
- G. Blasse:** On the Eu^{3+} fluorescence of mixed metal oxides, IV. The photoluminescent efficiency of Eu^{3+} -activated oxides. *J. chem. Phys.* **45**, 2356-2360, 1966 (No. 7). *E*
- G. Blasse & A. Bril:** On the Eu^{3+} fluorescence in mixed metal oxides, III. Energy transfer in Eu^{3+} -activated tungstates and molybdates of the type Ln_2WO_6 and Ln_2MoO_6 . *J. chem. Phys.* **45**, 2350-2355, 1966 (No. 7). *E*
- G. Blasse & A. Bril:** Broad band u.v. excitation of Sm^{3+} -activated phosphors. *Physics Letters* **23**, 440-441, 1966 (No. 7). *E*
- J. Donjon & G. Marie:** Modulateurs de lumière à large bande utilisant l'effet Pockels. *Acta electronica* **9**, 315-385, 1965 (No. 4). *L*
- J. A. Geurst:** Theory of insulated-gate field-effect transistors near and beyond pinch-off. *Solid-State Electronics* **9**, 129-142, 1966 (No. 2). *E*
- W. Kischio:** Halbleitendes Cadmium- und Zinkdiphosphid. *Z. Naturf.* **21a**, 1733-1734, 1966 (No. 10). *A*
- T. Klein:** Contour deposition — a new epitaxial deposition technique for semiconductor devices and integrated circuits. *Solid-State Electronics* **9**, 959-966, 1966 (No. 10). *M*
- J. R. Mansell:** Travelling-wave phototube theory. *Int. J. Electronics* **20**, 467-488, 1966 (No. 5). *M*
- B. J. Mulder:** Photo-injection of electrons into anthracene from electrolytic electrodes. *Solid State Comm.* **4**, 615-617, 1966 (No. 11). *E*
- R. F. Pearson & R. Cooper:** Magnetic crystals that manipulate light. *New Scientist* **32**, 92-94, 1966 (No. 517). *M*
- G. W. Rathenau:** Einige Gesichtspunkte zur Wechselwirkung in nichtleitenden magnetischen Kristallen. *Z. angew. Physik* **21**, 277-282, 1966 (No. 4). *E*
- H.-D. Rüpke:** Über die Ankopplung von Mikrowellenresonatoren zur Messung von Materialeigenschaften. *Archiv elektr. Übertr.* **20**, 617-620, 1966 (No. 11). *H*
- P. C. Scholten:** Indium contacts on CdS. *Solid-State Electronics* **9**, 1142-1143, 1966 (No. 11/12). *E*
- E. Schwartz:** Empirische Synthese verlustloser, symmetrischer Zirkulatoren. *Archiv elektr. Übertr.* **20**, 621-625, 1966 (No. 11). *A*
- P. J. W. Severin & A. G. van Nie:** A simple and rugged wide-band gas discharge detector for millimeter waves. *IEEE Trans. on microwave theory and techniques* **MTT-14**, 431-436, 1966 (No. 9). *E*
- J. G. Siekman:** Lassen met een elektronenbundel. *Ingenieur* **78**, O 99-108, 1966 (No. 47). *E*
- T. L. Tansley:** Heterojunction boundary conditions. *J. appl. Phys.* **37**, 3908, 1966 (No. 10). *M*
- D. J. Vinney:** Possible travelling-wave parametric amplifier using the Gunn effect. *Electronics Letters* **2**, 357-358, 1966 (No. 10). *M*
- J. Volger:** Progress in superconductivity. *IEEE Trans. on magnetics* **MAG-2**, 159-164, 1966 (No. 3). *E*